

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-288807

(43)Date of publication of application : 19.10.1999

(51)Int.Cl.

H01F 1/06

B22F 1/00

B22F 9/08

B22F 9/10

C22C 38/00

H01F 1/08

(21)Application number : 11-028997

(71)Applicant : TODA KOGYO CORP

(22)Date of filing : 05.02.1999

(72)Inventor : HAMANO MASAOKI
YAMAZAKI MINORU
MIZUGUCHI HIROTAKA

(30)Priority

Priority number : 10 41074 Priority date : 06.02.1998 Priority country : JP

(54) FLAT LEAF-LIKE RARE EARTH-IRON-BORON MAGNET ALLOY PARTICLE POWDER FOR BONDED MAGNET, MANUFACTURE THEREOF AND THE BONDED MAGNET

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide flat leaf-like rare earth-iron-boron magnet alloy particle powder for a bonded magnet which is provided with a large residual magnetic flux density Br and high coercive force iHc with a large maximum magnetic energy product (BH)max, superior rust-proof property and superior leafing effect, a manufacturing method and a bonded magnet, using the rare earth-iron-boron magnet alloy particle powder.

SOLUTION: This flat-leaf-like rare earth-iron-boron magnet alloy particle powder whose average long axis diameter is 60-500 μm , average short axis diameter of 50-460 μm , with average thickness of 3-100 μm , average axis ratio of 1.1-10 and average aspect ratio of 3-100 is obtained by heating and dissolving the coarse alloy of a rare earth-iron-boron type, turning it into a molten alloy, making it flow out from a nozzle, generating the liquid drop of the molten alloy by an atomizing gas to the flow-out molten alloy, cooling and solidifying it by making the liquid drop collide with the surface of a rotary cooling body of a conical shape or a disk shape, turning it into a rapidly cooled solidified particle powder, and then performing heat treatment in the temperature range of 500-850° C.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] It is the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder with which particle shape consists of a foliaceous particle of a flat tree, the object for bond magnets 1.1-10, and whose average aspect ratio (the diameter of a major axis / thickness) 3-100 micrometers and an average axial ratio (the diameter of a major axis / diameter of a minor axis) are [the diameter of an average major axis / 60-500 micrometers and the diameter of an average minor axis] 3-100 for 50-460 micrometers and average thickness -- flat -- leaves -- ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[Claim 2] The alloy presentation of a rare earth-iron-boron system magnet alloy particle is formula $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ (however, R). A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w Respectively $5 \leq x \leq 10$, $1.0 \leq y \leq 9.0$, $0.1 \leq z \leq 5$, $2 \leq w \leq 7$, $9 \leq (x+w)$, $5 < (y+z)$ -- the hard magnetism crystal phase which consists of the soft magnetism crystal phase and $Nd_2Fe_{14}B$ mold tetragonal-system crystal phase which have the presentation expressed and consist of one crystal phase of the mixed phases of αFe , the solid solution (α solid solution which consists of Fe and M), or the αFe and the solid solution, respectively It has the alloy organization which deposits in a soft magnetism amorphous phase, and, moreover, said soft magnetism amorphous phase is below 10 area % to all alloy organizations. Foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets according to claim 1 said whose soft magnetism crystal phase is more than 10 area % to all the crystalline structures that doubled said soft magnetism crystal phase and said hard magnetism crystal phase and whose remainder is said hard magnetism crystal phase.

[Claim 3] Foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat [coercive force $iH_c / 3.5$ or more kOes and a residual magnetic flux density $Br / 9.5$ or more kGs and maximum magnetic energy (product BH) max] tree for the bond magnets according to claim 1 or 2 which is 13 or more MGOes.

[Claim 4] Formula $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ (however, R) A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w Respectively $5 \leq x \leq 10$, $1.0 \leq y \leq 9.0$, $0.1 \leq z \leq 5$, $2 \leq w \leq 7$, $9 \leq (x+w)$, $5 < (y+z)$ -- the presentation expressed -- the rough alloy manufactured so that it might become comparatively After carrying out the heating dissolution and considering as an alloy molten metal, the alloy molten metal concerned is made to flow out of a nozzle.

The drop of an alloy molten metal is made to generate by spraying gas on the outflow alloy molten metal concerned. It considers as the quenching congelation particle powder which is made to carry out cooling coagulation and consists of a foliaceous particle of a flat tree by making this drop collide with the front face of the rotation cooling object of the cone mold arranged in the flow direction of the drop concerned, or a disk mold before the drop concerned congeals. Subsequently The manufacturing method of the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets according to claim 1 to 3 characterized by heat-treating the quenching congelation particle powder concerned in a 600-850-degree C temperature requirement.

[Claim 5] the object for bond magnets according to claim 1 to 3 -- flat -- leaves -- the bond magnet which comes to distribute ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder in binder resin -- it is -- being concerned -- flat -- leaves -- the bond magnet with which ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder is characterized by 85 - 99% of the weight of the thing which it comes out comparatively and is mixed.

[Translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the bond magnet which used this rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder for the big residual magnetic flux density B_r , 9.5 or more kGs and the high coercive force iH_c , the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets that had 3.5 or more kOes, consequently whose maximum magnetic energy (product BH) max was large, and was excellent in rust-proofing nature especially, and was excellent in the leafing effectiveness, and its manufacturing method list especially.

[0002]

[Description of the Prior Art] Although it is widely used for various applications, such as an electric product and autoparts, from the former since a bond magnet has advantages, such as the configuration free nature, high dimensional accuracy, etc., the miniaturization of the bond magnet itself used for this is strongly demanded with small and lightweight-izing of an electric product or autoparts in recent years.

[0003] For the miniaturization of a bond magnet, it has magnetic high performance-ization, i.e., the big residual magnetic flux density B_r and the high coercive force iH_c , consequently it is required strongly that maximum magnetic energy (product BH) max should be large.

[0004] As everyone knows, since ferrite powder is oxide, and it excels in corrosion resistance and is manufactured using cheap raw materials, such as oxide, such as barium and strontium, and a ferric acid ghost, the bond magnet (henceforth a "ferrite bond magnet") using magnetoplumbite type ferrites, such as a barium ferrite and a strontium ferrite, is used economically and widely.

[0005] However, the magnetic properties of this ferrite bond magnet do not usually have a residual magnetic flux density B_r enough for small [of the device used by 2 - 3kOe extent and maximum magnetic energy (product BH) max, being 1.6 - 2.3MGoe extent], and lightweight[2 - 3kG extent and coercive force iH_c]-izing.

[0006] The demand to magnetic high-performance-izing and magnetic low-pricing does not have the place which remains, since the Nd-iron-boron system magnet alloy using Nd which is a low price comparatively also among rare earth elements was mostly developed by Sumitomo Special Metals Co., Ltd. and U.S. General Motors at coincidence in 1982, it is widely applied to various applications and expansion to a bond magnet has also been performed. In quest of improvement in the magnetic properties, development of a rare earth-iron-boron system exchange spring magnet alloy is still more prosperous, and the part is already put in practical use.

[0007] It is expected as what has high possibility of becoming the magnet which said exchange spring magnet is the exchange interaction of iron (αFe) or an iron compound, and a $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold tetragonal compound showing a magnetic spring phenomenon, and the description having a low rare earth content and the big residual magnetic flux density B_r , and was excellent in cost performance.

[0008] That is, since the rare earth-iron-boron system exchange spring magnet alloy of under 10 atom % can reduce the content of expensive rare earth with the high and potential on magnetic properties compared with the rare earth-iron-boron system magnet alloy of 10 - 15 atom % with the amounts of rare earths 10 is inadequate, and the high residual magnetic flux density beyond $B_r \geq 10\text{kG}$ is not obtained. ral Motors developed, the amounts of rare earth, such as Nd, have the description of being economical.

[0009] There are a system to which said amounts of rare earth, such as Nd, contain αFe in the rare earth-iron-boron system exchange spring magnet alloy of under 10 atom % as a soft magnetism phase, and a system containing Fe_3B or Fe_2B . Although the residual magnetic flux density B_r of the former is generally as large as 10-13kG, coercive force iH_c is as low as at most less than 3.5 kOes, and although coercive force iH_c of the latter is generally comparatively as high as 3.5-7.7kOe, since a residual magnetic flux density B_r is below 10kG extent, although a residual magnetic flux density B_r is large compared with "MQP", compared with αFe subject system, it is low.

[0010] By the way, in fields, such as a small motor which are the main applications of the bond magnet using a rare earth-iron-boron system magnet alloy, to be the magnetic properties which were able to balance a residual magnetic flux density B_r and coercive force iH_c , i.e., for a residual magnetic flux density B_r to be [9.5 or more kGs and coercive force iH_c] 3.5 or more kOes, is strongly demanded from a viewpoint of the miniaturization of a motor, and the magnetic stability of the magnet used.

[0011] Moreover, the magnet alloy containing rare earth, such as Nd, oxidizes in air, tends to generate a stable oxide gradually, and has the fault of being inferior to rust-proofing nature. Therefore, since corrosion resistance is inferior, as for the bond magnet manufactured using the magnet alloy containing rare earth, such as Nd, it is common that rust-proofing coatings, such as dipping of a resin system, spray coating, electropainting, or metal plating, are generally performed.

[0012] Therefore, if the rust-proofing nature of the magnet alloy containing rare earth, such as Nd, improves, since it can expect that it also sets for the above applications, and rust-proofing coating of a bond magnet front face can be simplified or saved labor and rust-proofing coating may be able to be omitted depending on an application, improvement in the rust-proofing nature of a rare earth-iron-boron system magnet alloy is demanded strongly.

[0013] Moreover, although a bond magnet is usually manufactured by scouring magnet powder and fabricating it in binder resin, if the configuration of magnet powder is a thin film integrated circuit, it is known that machine orientation can be carried out easily and the pack density to the inside of binder resin can be raised. However, even if it is a thin film integrated circuit particle, in having the curved field, it becomes difficult to fully raise pack density. namely, -- although applications differ -- JP,2-34706,A -- "... generally as powder for coatings, it is supposed that the thing of a thin film integrated circuit is desirable. That is, when powder is mixed to the resin for coatings and it applies by brush coating, a spray, etc., it is because powder carries out a laminating to the painted surface at parallel (this is called leafing phenomenon), the continuous coat by powder is formed, a material is intercepted from the open air and better corrosion-resistant weatherability is given with the surface tension produced at the time of hardening of resin. ..." -- in manufacture of a bond magnet, particle shape is not a curved surface as a

publication -- flat -- leaves -- it becomes possible for the saturation magnetic flux density B_r of a bond magnet to improve, since the pack density of the powder in a bond magnet can be easily raised according to the leafing effectiveness by using the magnet alloy particle powder which consists of a particle of a **, as a result to raise maximum magnetic energy (product BH) max. Then, rare earth magnet alloy particle powder with which the particle shape excellent in the leafing effectiveness consists of a foliaceous particle of the flat tree which is not a curved surface is desired.

[0014] That is, the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree which had the big residual magnetic flux density B_r and the high coercive force iH_c , consequently whose maximum magnetic energy (product BH) max was large, and was excellent in rust-proofing nature, and was excellent in the leafing effectiveness is demanded strongly.

[0015] In addition, in the quenching permanent magnet ingredient which uses Fe as a principal component (however, it is under 91 atom %), and contains one sort or two sorts or more of rare earth elements (R) and boron (B), the permanent magnet ingredient with which the remainder consists of a crystalline substance phase containing a R-Fe-B system hard magnetism compound including the soft magnetism amorphous phase below 10 area % is well-known (JP,8-162312,A).

[0016]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Although the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder which had the big residual magnetic flux density B_r and the high coercive force iH_c , consequently whose maximum magnetic energy (product BH) max was large, and was excellent in rust-proofing nature, and was excellent in the leafing effectiveness is [current and] just going to be demanded most, the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder which has such a property is not yet obtained.

[0017] namely, the above -- a rare earth-iron-boron system magnet alloy given in JP,8-162312,A the "Table 5" of this official report -- a residual magnetic flux density B_r -- 0.62-0.97T (it is equivalent to 6.2-9.7kG.) Extent and coercive force iH_c are 0.16 - 0.21 MA/m (it is equivalent to 1.25-2.6kOe.). Extent and maximum magnetic energy (product BH) max are 19.7 - 72.0 kJ/m³ (it is equivalent to 2.5 - 9.0MGOe.). as being indicated as extent -- coercive force iH_c -- at most -- 3kOe extent and the residual magnetic flux density B_r were as low as 10kG extent at most.

[0018] the above -- after a rare earth-iron-boron system magnet alloy given in the examples 2-4 of JP,8-162312,A grinds a quenching thin band, it is the bulk object acquired by carrying out extrusion in the vacuum, and is applied to this invention -- flat -- leaves -- a gestalt is different from ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[0019] Then, this invention makes it a technical technical problem to obtain the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets which had the big residual magnetic flux density B_r and the high coercive force iH_c , consequently whose maximum magnetic energy (product BH) max was large, and was excellent in rust-proofing nature, and was excellent in the leafing effectiveness.

[0020]

[Means for Solving the Problem] This invention as follows can attain said technical technical problem.

[0021] Namely, this invention is rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder with which particle shape consists of a foliaceous particle of a flat tree. 50-460 micrometers and average thickness 3-100 micrometers, [the diameter of an average major axis] [60-500 micrometers and the diameter of an

average minor axis] the object for bond magnets 1.1-10, and whose average aspect ratio (the diameter of a major axis / thickness) an average axial ratio (the diameter of a major axis / diameter of a minor axis) is 3-100 -- flat -- leaves -- it is ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[0022] Moreover, for this invention, the alloy presentation of a rare earth-iron-boron system magnet alloy particle is formula $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ (however, R). A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w Respectively $5 \leq x \leq 10$, $1.0 \leq y \leq 9.0$, $0.1 \leq z \leq 5$, $2 \leq w \leq 7$, $9 \leq (x+w)$, $5 < (y+z)$ -- the hard magnetism crystal phase which consists of the soft magnetism crystal phase and $Nd_2Fe_{14}B$ mold tetragonal-system crystal phase which have the presentation expressed and consist of one crystal phase of the mixed phases of αFe , the solid solution (α solid solution which consists of Fe and M), or the αFe and the solid solution, respectively It has the alloy organization which deposits in a soft magnetism amorphous phase, and, moreover, said soft magnetism amorphous phase is below 10 area % to all alloy organizations. It is the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of said flat tree for bond magnets said whose soft magnetism crystal phase is more than 10 area % to all the crystalline structures that doubled said soft magnetism crystal phase and said hard magnetism crystal phase and whose remainder is said hard magnetism crystal phase.

[0023] Moreover, this invention is the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat [coercive force $iH_c / 3.5$ or more kOes and a residual magnetic flux density Br] tree for said bond [one 9.5 or more kGs and whose maximum magnetic energy (product BH) max are 13 or more MGOes of] magnets.

[0024] Moreover, this invention is formula $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ (however, R). A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w Respectively $5 \leq x \leq 10$, $1.0 \leq y \leq 9.0$, $0.1 \leq z \leq 5$, $2 \leq w \leq 7$, $9 \leq (x+w)$, $5 < (y+z)$ -- the presentation expressed -- the rough alloy manufactured so that it might become comparatively After carrying out the heating dissolution and considering as an alloy molten metal, the alloy molten metal concerned is made to flow out of a nozzle. The drop of an alloy molten metal is made to generate by spraying gas on the outflow alloy molten metal concerned. It considers as the quenching congelation particle powder which is made to carry out cooling coagulation and consists of a foliaceous particle of a flat tree by making this drop collide with the front face of the rotation cooling object of the cone mold arranged in the flow direction of the drop concerned, or a disk mold before the drop concerned congeals. Subsequently It is the manufacturing method of the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of one which is characterized by heat-treating the quenching congelation particle powder concerned in a 600-850-degree C temperature requirement of said flat trees for bond magnets.

[0025] moreover, this invention -- said object for one of bond magnets -- flat -- leaves -- the bond magnet which comes to distribute ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder in binder resin -- it is -- being concerned -- flat -- leaves -- ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder is the bond magnet characterized by 85 - 99% of the weight of the thing which it comes out comparatively and is done for mixed combination.

[0026] It will be as follows if the configuration of this invention is explained in more detail.

[0027] First, the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for

bond magnets concerning this invention is described.

[0028] The flat tree of the particle shape of the particle which constitutes the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder for bond magnets concerning this invention is foliaceous. Preferably the diameter of an average major axis of the powder concerned 60-500 micrometers 80-500 micrometers, It is 100-500 micrometers more preferably. The diameter of an average minor axis 50-460 micrometers, 70-460 micrometers is 85-460 micrometers more preferably. It is 1.1-3 more preferably. average thickness -- 3-100 micrometers -- desirable -- 5-95 micrometers -- it is -- an average axial ratio (the diameter of a major axis / diameter of a minor axis) -- 1.1-10 -- desirable -- 1.1-5 -- an average aspect ratio (the diameter of a major axis / thickness) -- 3-100 -- desirable -- 3-50 -- it is 3-30 more preferably.

[0029] The alloy presentation of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention is described.

[0030] Said alloy presentation is expressed with formula $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$. R is a kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce, or two sorts or more among a formula. If a residual magnetic flux density Br and coercive force iHc are taken into consideration, that with which other rare earth elements were mixed by Nd, Pr, a Nd-Pr alloy, and these is desirable, and Nd and Pr are the most desirable. However, even if rare earth elements other than the above are contained below 10 atom % to the total amount of rare earth, it does not interfere.

[0031] the amount of R -- $5 \leq x \leq 10$ -- it is -- desirable -- $5.5 \leq x \leq 9$ -- it is $6 \leq x \leq 8$ more preferably. The amount of deposits of a hard magnetism crystal phase which consists of a Nd₂Fe₁₄B₁ mold tetragonal-system crystal phase when x is less than five is inadequate, the amount of deposits of a soft magnetism crystal phase which consists of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution when coercive force is not set to 3.5 or more kOes but exceeds 10 is inadequate, and the high residual magnetic flux density beyond Br>=10kG is not obtained.

[0032] The amount of Fe(s) is expressed with $100-x-y-z-w$, and is 69 - 86% of range to all atoms. A residual magnetic flux density Br decreases in less than 69% of case, and 9.5 or more kGs made into the purpose of this invention are not obtained at it. When exceeding 86%, the amount of R and the amount of Co(es) will decrease relatively, and the coercive force iHc made into the purpose of this invention is not acquired for 3.5 or more kOes.

[0033] Co is an indispensable element which brings about improvement in coercive force, increase of magnetization, the improvement in rust-proofing nature, and improvement in the thermal stability by the rise of the Curie point with M element.

[0034] the amount of Co(es) -- $1.0 \leq y \leq 9.0$ -- it is -- desirable -- $1.5 \leq y \leq 9.0$ -- it is $2.0 \leq y \leq 9.0$ more preferably. The rise of coercive force or the Curie point is not enough for the case of less than 1.0, and it is inferior to thermal stability. When exceeding 9.0, the fall of the residual magnetic flux density Br by reduction of an iron component becomes remarkable, and 10 or more kGs are not obtained.

[0035] M is an element more than a kind chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si, can raise the crystal magnetic anisotropy of a hard magnetism crystal phase which consists of a Nd₂Fe₁₄B₁ mold tetragonal-system crystal phase, and can acquire high coercive force according to the detailed-ized effectiveness of a deposit phase. Moreover, the soft magnetism crystal phase which consists of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution can be stabilized, and the corrosion resistance of a

bond magnet and thermal stability can be improved.

[0036] Among said M elements, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si can acquire higher coercive force according to the synergistic effect, if it adds with other M elements.

[0037] the amount of M element -- $0.1 \leq z \leq 5$ -- it is -- desirable -- $0.2 \leq z \leq 4$ -- it is $0.3 \leq z \leq 3.5$ more preferably. It is deficient in the improvement effectiveness of coercive force, as a result inferior to the case of less than one at thermal stability. In exceeding 5, it causes the reduction of Br by reduction of an iron system component (Fe, Co).

[0038] Among said M elements, while Ti, Zr, Nb, Hf, Ta, Si, and Ga contribute to improvement in coercive force, it can be easy to form an amorphous phase, an amorphous phase can remain in stability during an alloy organization, the magnet alloy particle powder with which rust-proofing nature was demonstrated can be obtained, and the bond magnet excellent in corrosion resistance is obtained by using this.

[0039] an element indispensable since B constitutes the hard magnetism crystal phase which consists of a Nd₂Fe₁₄B₁ mold tetragonal-system crystal phase -- it is -- the amount -- $2 \leq w \leq 7$ -- it is -- desirable -- $2.5 \leq w \leq 6.5$ -- it is $3 \leq w \leq 6.5$ more preferably. The amount of deposits of a hard magnetism crystal phase which consists of a Nd₂Fe₁₄B₁ mold tetragonal-system crystal phase becomes inadequate for the case of less than two, and it is not set to $iH_c \geq 3.5 \text{ kOe}$. In exceeding 7, B becomes superfluous and causes reduction of a residual magnetic flux density Br.

[0040] The sum of the amount of R and the amount of B is $9 \leq (x+w)$, and is ten or more preferably. Sufficient soft magnetism amorphous phase by quenching is not formed in the case of less than nine, and heat treatment cannot realize $iH_c \geq 3.5 \text{ kOe}$ to it, either. If it takes into consideration holding the big residual magnetic flux density Br, as for the upper limit, 18 will be desirable, and it will be 17 more preferably.

[0041] the sum of the amount of Co(es), and the amount of Ms -- $5 \leq (y+z)$ -- it is -- it is 5.5 or more more preferably 5.1 or more. As for the case of five or less, the effectiveness of raising coercive force and thermal stability becomes is hard to be acquired. If it takes into consideration holding the big residual magnetic flux density Br, as for the upper limit, 11 will be desirable, and it will be 10 more preferably.

[0042] The alloy organization of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention is described.

[0043] The particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention has the soft magnetism amorphous phase below 9 area % preferably below 10 area % to all alloy organizations. The lower limit of a soft magnetism amorphous phase is 1 area %.

[0044] As a result of magnetic association by the magnetic exchange interaction committed between bi-phases being able to weaken since distance with a soft magnetism crystal phase or a hard magnetism crystal phase becomes large when a soft magnetism amorphous phase exceeds 10 area % in the two-dimensional observation visual field of all alloy organizations, the effectiveness of raising a magnet property rather is not acquired. If said rust-proofing effectiveness of a soft magnetism amorphous phase is taken into consideration, the lower limit will be 1 area % preferably.

[0045] a soft magnetism amorphous phase -- eight to 20 atom % -- desirable -- the rare earth of 9 - 15 atom %, and 70 to 90 atom % -- it consists of boron of 5 - 18 atom % preferably the iron of 70 - 85 atom % or iron, an alloy with the above-mentioned element M, and below 22 atom %. Since this soft magnetism amorphous phase can control big and rough growth of crystal grain and can make a detailed crystal phase

form in heating down stream processing for crystallization while it has soft magnetism, it can raise the hard magnetism of the whole alloy.

[0046] Moreover, since each of a soft magnetism crystal phase and a hard magnetism crystal phase is carrying out the distributed deposit into the soft magnetism amorphous phase at the shape of an island, since this soft magnetism amorphous phase encloses the perimeter of the soft magnetism crystal phase which mainly bears a magnetic role, or a hard magnetism crystal phase and it controls advance of oxidization, it can do so the effectiveness as a barrier which can prevent advance of rust, and can raise the rust-proofing nature of a magnet alloy particle.

[0047] A soft magnetism amorphous phase can also expect enough effectiveness, such as a mechanical strength which an amorphous phase usually has, chemical resistance, and rust-proofing nature.

[0048] The soft magnetism crystal phase in the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention consists of one crystal phase of the mixed phases of αFe , the solid solution (α solid solution which consists of Fe and M), or the αFe and the solid solution, and is included more than 10 area % to all the crystalline structures that doubled the soft magnetism crystal phase and the hard magnetism crystal phase. The soft magnetism crystal phase has contributed to improvement in a residual magnetic flux density B_r . In the case of under 10 area %, the magnet alloy particle powder which has the big residual magnetic flux density B_r made into the purpose of this invention cannot be obtained. If the ratio of the hard magnetism crystal phase which bears the role which raises coercive force iH_c is taken into consideration, the upper limit has desirable 90 area %.

[0049] The diameter of average crystal grain of a soft magnetism crystal phase has desirable 5-100nm, and it is the range of 10-50nm more preferably.

[0050] In a soft magnetism crystal phase, in addition to one crystal phase of the mixed phases of αFe , the solid solution (α solid solution which consists of Fe and M), or the αFe and the solid solution, Fe_3B , Fe_2B and the solid solution of these and M -- further -- the intermetallic compound of Fe and M, such as Fe_2Zr , -- a state diagram -- although it may be contained unescapable on a production process-like, when obtaining the magnet alloy particle powder which has many properties made into the purpose of this invention, especially a problem does not become.

[0051] The hard magnetism crystal phase in the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention consists of a $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold tetragonal-system crystal phase, and is under 90 area % to all the crystalline structures.

[0052] When exceeding 90 area %, a soft magnetism crystal phase decreases and the big residual magnetic flux density B_r is not obtained. If the coercive force iH_c value made into the purpose of this invention is taken into consideration, the lower limit has desirable 10 area %. It is 20 to 85 area % more preferably.

[0053] Said hard magnetism crystal phase does so the effectiveness of making coercive force iH_c discovering. Moreover, a part of M element enters into this hard magnetism crystal phase, raises an anisotropy constant, and may raise coercive force as a result.

[0054] The minute compound phase which deposits impossibly in state diagram besides a $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold compound may be included in the hard magnetism crystal phase.

[0055] The diameter of average crystal grain of a hard magnetism crystal phase has desirable 5-100nm or

less, and it is the range of 10-50nm more preferably.

[0056] 9.5 or more kGs of residual magnetic flux densities B_r are 10.0 or more kGs preferably, 3.5 or more kOes of coercive force iH_c have 4.0 or more kOes preferably, and, as for the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention, 13 or more MGOe(s) of maximum magnetic energy (product BH) max(es) have 15 or more MGOes preferably. For a residual magnetic flux density B_r , 13kG(s) and coercive force iH_c are [8kOe(s) and maximum magnetic energy (product BH) max of the upper limit] 25MGOe(s). In addition, among the magnetic properties of the above-mentioned powder, it was computed by having carried out the density correction of the B_r from B_r of a green compact, and also performed count of (BH) max using this B_r .

[0057] Moreover, the rust-proofing nature of the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention is JIS. Z Preferably, elapsed time until rusting occupies 10 area % is 60 hours or more more preferably, and as shown in a back appearance example compared with the conventional Nd-Fe-B system alloy particle powder, it is clearly excellent by the salt spray test method based on 2371, for 55 hours or more for at least 50 hours or more.

[0058] Next, the manufacturing method of the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention is described.

[0059] First, formula $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ (however, R) A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w A metal-like element raw material and/or an alloy-like raw material are blended, and the heating dissolution of this is carried out so that it may become comparatively. respectively $5 \leq x \leq 10$, $1 \leq y \leq 9$, $0.1 \leq z \leq 5$, $2 \leq w \leq 7$, $9 \leq (x+w)$, and $5 < (y+z)$ -- the presentation expressed -- subsequently The rough alloy of the above-mentioned presentation is obtained by carrying out cooling solidification.

[0060] As said metal-like element raw material, that what is necessary is just to use a commercial thing, the gestalt has the thing of various gestalten, such as the shape of powder, mass, and a piece, and tabular, and the all can be used for it.

[0061] As said alloy-like raw material, there are ferro NEOJI, a misch metal, didym, etc. by ferroboron and rare earth elements by the boron element that what is necessary is just to use a commercial thing. The gestalt has the thing of various gestalten, such as the shape of powder, mass, and a piece, and tabular, and the all can be used for it.

[0062] It is desirable to be able to perform said heating dissolution with a well-known arc solution process, a RF solution process, etc., and to carry out in inert atmospheres, such as inside of a vacuum and argon gas.

[0063] Next, carry out the heating dissolution of said obtained rough alloy, consider as an alloy molten metal, and, subsequently the alloy molten metal concerned is made to flow out of a nozzle. The drop of an alloy molten metal is made to generate by spraying gas on the outflow alloy molten metal concerned. It considers as the quenching congelation particle powder which is made to carry out cooling coagulation and consists of a foliaceous particle of a flat tree by making this drop collide with the front face of the rotation cooling object of the cone mold arranged in the drop flow direction concerned, or a disk mold before the drop concerned congeals. Subsequently If the quenching congelation particle powder concerned is crystalized by heat-treatment, the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention can be obtained.

[0064] As for said melting temperature, it is [that what is necessary is just to decide according to an alloy presentation] desirable to usually heat at temperature higher 50 degrees C or more than the melting point of said rough alloy.

[0065] As said gas to spray, inert gas is desirable, for example, is gaseous helium, argon gas, etc. It is argon gas preferably. the pressure of the gas to spray -- 5 - 200 kgf/cm² -- it is 10 - 100 kgf/cm² preferably. When exceeding 200 kgf/cm², by the time a cooling rate becomes quick too much and a drop reaches a rotation cooling object, cooling coagulation may arise.

[0066] The configuration of said rotation cooling object is a cone mold or a disk mold. It is the cone mold which the desirable foliaceous particle of a flat tree tends to obtain. Moreover, the rotational frequency of said rotation cooling object is 3000 - 12000rpm preferably 1000 to 20000 rpm. When a rotational frequency is less than 1000 rpm, the quenching congelation particles obtained become easy to lap, it may become a massive particle, and cooling coagulation by quenching is not fully performed, but generating [of a soft magnetism amorphous phase] becomes inadequate. Moreover, the consistency of the magnet powder of a bond magnet is no longer obtained fully. In addition, when making the drop of an alloy molten metal collide with the rotation cooling object of a disk mold, as for the collision place, it is desirable to consider as the part shifted a little to the circumferencial direction from the revolving shaft of the rotation cooling object of a disk mold.

[0067] Moreover, the heating dissolution of said rough alloy, cooling solidification and the heating dissolution for the second time, and cooling coagulation with a rotation cooling object may be continuously performed within the same equipment as occasion demands.

[0068] In addition, cooling coagulation with a rotation cooling object may be directly performed within the same equipment from the heating dissolution of each raw material of said metal-like element raw material and/or said alloy-like raw material, without carrying out cooling solidification in advance.

[0069] In addition, in cooling coagulation with a rotation cooling object, since the drop formed in early stages tends to become comparatively large, it is desirable not to extract the quenching congelation particle powder obtained in early stages, or to remove a big and rough particle by a classification etc. subsequently. Moreover, since the drop formed micrifies and also atomizes the quenching congelation particle powder obtained when the alloy molten metal which remains has decreased, as for the quenching congelation particle powder obtained just before termination, it is desirable not to extract or to remove a particle component by a classification etc.

[0070] The particle which constitutes the quenching congelation particle powder obtained by cooling coagulation with said rotation cooling object mainly includes an amorphous alloy organization.

[0071] This amorphous alloy organization shows a broadcloth peak according to an X diffraction, and can check with the halo pattern of the electron diffraction by the transmission electron microscope (TEM). In addition, to include a crystal phase partially without obtaining an amorphous alloy organization 100% depending on an alloy presentation, but since the purpose of this invention can be attained, what is necessary is just sufficient amount.

[0072] This amorphous alloy organization has soft magnetism, and in order that it may control big and rough growth of crystal grain and may enable formation of a detailed crystal phase in the heat treatment process for crystallization with that magnetic role, it is bearing the important role which raises the hard magnetism of the whole alloy.

[0073] Said heat treatment is performed in a 600-850-degree C temperature requirement. In the case of

less than 600 degrees C, the hard magnetism crystal phase which consists of a Nd₂Fe₁₄B₁ mold tetragonal-system crystal phase does not deposit enough, and the coercive force of 3.5 or more kOes is not acquired. When exceeding 850 degrees C, the big and rough growth of a soft magnetism crystal phase which consists of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution becomes remarkable, the ratio of the soft magnetism amorphous phase in which it is hard coming to be discovered of coercive force, and it remains falls remarkably, and rust-proofing nature becomes is hard to be demonstrated. In addition, what is necessary is just to choose suitably the optimal heating temperature for discovering good magnetic properties according to the alloy presentation of quenching congelation particle powder.

[0074] Although there will be especially no problem if the ambient atmosphere in said heat-treatment is range which does not spoil the magnetic properties of the magnet alloy particle powder obtained, the inside of inert atmospheres, such as argon gas, or the vacuum of 10 to 1 or less Torr is desirable.

[0075] The heating time in said heat-treatment has 10 desirable seconds or more at least. the deposit of soft magnetism crystal phase sufficient in less than 10 seconds and a hard magnetism crystal phase should do -- as for the coercive force of 3.5 or more kOes, all tend to be obtained in order that a soft magnetism crystal phase may carry out big and rough growth, if there is an inclination which is not, and less than 1 hour is desirable in it being long and 1 hour is surpassed.

[0076] A crystal phase is generated from an amorphous phase by said heat-treatment. It is required to heat so that the amorphous phase below 10 area % may be made to remain to all alloy organizations, without making an amorphous phase into a crystal phase completely at this time.

[0077] As conditions for leaving an amorphous phase, it is necessary to set up the conditions of said heat-treatment so that a deposit and growth of a crystal phase may not result extensively. Moreover, since stabilization of an amorphous phase and growth suppression of a deposit phase can also be planned according to the effectiveness of an alloying element M, a setup of a suitable alloy presentation is also important. As an example of a heating approach, the flash plate annealing method and the rapid heating-cooling method are mentioned, and the usual heat-treating method is also enough depending on an alloy presentation.

[0078] the abundance of the amorphous phase which remains -- desirable -- one to 10 area % -- it is below 9 area % more preferably. It is because magnetic association resulting from the exchange interaction committed between an amorphous phase and a crystal phase or among crystal phases can weaken under by 1 area % when the effectiveness made into the aforementioned purpose is not acquired, and improvement in the rust-proofing engine performance cannot be expected, either but it exceeds 10 area %.

[0079] Next, the bond magnet concerning this invention is described.

[0080] The bond magnet concerning this invention comes to distribute the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention in binder resin, and, in addition to this, 85 - 99 % of the weight and the remainder serve as [the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of this flat tree] binder resin from an additive. Although it changes a little with fabricating methods, in the case of an injection-molding bond magnet, its 96 - 98.5 % of the weight is more desirable, and when it is a calender shaping bond magnet, to it, 85 - 90 % of the weight is desirable [the desirable rate of the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention / 88 - 93 % of the weight is desirable, and / when it is an extrusion-molding bond magnet, 85 -

92 % of the weight is desirable and / when it is a compression-molding bond magnet, 95 - 98.5 % of the weight is desirable and].

[0081] 7.0 or more kGs of residual magnetic flux densities Br are 7.2 or more kGs preferably, 3.5 or more kOes of coercive force iHc have 3.7 or more kOes preferably, maximum energy product (BH) max has 9.7 or more MGOes, and, as for the bond magnet concerning this invention, 9.5 or more MGOes of consistencies have three or more [6.1g //cm] preferably.

[0082] In addition, under the environment of 80 degrees C and 90% relative humidity, at least 120 hours or more have desirable elapsed time until rusting occupies 10 area %, and the corrosion resistance of the bond magnet concerning this invention has 130 more desirable hours or more.

[0083] Next, the manufacturing method of the bond magnet concerning this invention is described.

[0084] It can mix [binder resin and], and the bond magnet concerning this invention can knead the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention, and can obtain it by carrying out fabrication of this kneading object by the method of fabricating common knowledge, such as injection molding, extrusion molding, compression molding, or calender shaping.

[0085] Many things can be chosen by the fabricating method, as said binder resin, when it is injection molding, extrusion molding, and calender shaping, thermoplastics can be used, and thermosetting resin can be used when it is compression molding. As said thermoplastics, resin, such as a nylon (PA) system, a polypropylene (PP) system, an ethylene vinyl acetate (EVA) system, a polyphenylene sulfide (PPS) system, a liquid crystal resin (LCP) system, an elastomer system, and a rubber system, can be used, and resin, such as an epoxy system and a phenol system, can be used as said thermosetting resin.

[0086] The mixed rate of the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning said this invention is 85 - 99 % of the weight, although the optimal mixed rate changes a little with fabricating methods, in injection molding, its 88 - 93 % of the weight is desirable, its 85 - 92 % of the weight is desirable in extrusion molding, its 96 - 98.5 % of the weight is desirable in compression molding, and its 85 - 90 % of the weight is desirable in calender shaping. The bond magnet which there are too few rates of magnet alloy particle powder for less than 85% of the weight of the case, and has sufficient magnetic properties in it is not obtained. The upper limit of the mixed rate of the magnet alloy particle powder in said each fabricating method can be determined based on the demand of the fluidity of a kneading object with the binder resin in which each shaping is possible, or mixture, or the mechanical strength of a moldings.

[0087] In addition, in order to face manufacturing a bond magnet, to make shaping easy or to fully pull out magnetic properties, the additive of common knowledge, such as a plasticizer, lubricant, and a coupling agent, other than binder resin may be used as occasion demands.

[0088] That these additives should just choose a suitable thing according to the purpose, as a plasticizer, the commercial item according to each use resin can be used, and the total quantity can use about 0.01 - 5.0 % of the weight to the binder resin to be used.

[0089] As said lubricant, stearin acid, its derivative, inorganic lubricant, an oil system, etc. can be used, and about 0.01 - 1.0 % of the weight can be used to the whole bond magnet.

[0090] As said coupling agent, use resin and the commercial item according to a filler can be used, and about 0.01 - 3.0 % of the weight can be used to the binder resin to be used.

[0091] said mixing -- mixers, such as a Heischel mixer, a V character mixer, and NAUTA, etc. -- it can

carry out -- kneading -- a 1 shaft kneading machine, a 2 shaft kneading machine, and a mortar -- a type kneading machine, an extrusion kneading machine, etc. can perform.

[0092] The moldings obtained by carrying out fabrication by said fabricating method can be used as the bond magnet concerning this invention electromagnet magnetization and by carrying out pulse magnetization according to a conventional method.

[0093]

[Embodiment of the Invention] The gestalt of typical operation of this invention is as follows.

[0094] The particle shape of the particle which constitutes rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder judged by performing appearance observation by the electron microscope. Moreover, calculation of the diameter of an average major axis of particle powder, the diameter of an average minor axis, and average thickness was shown by the result of having measured about 30 particles shown in the electron microscope photograph expanded by 100 times.

[0095] The phase structure of the alloy organization of the particle which constitutes rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder was observed and measured using high-resolution transmission-electron-microscope HR-TEM (JEOL Co., Ltd. make), a nano beam electron diffractograph (JEOL Co., Ltd. make), an energy dispersive X-ray analyzer EDX (JEOL Co., Ltd. make), and X-ray diffractometer (Rigaku Industrial Corp.) (target: iron).

[0096] Magnetic structure of said alloy organization was considered as the check of magnetic structure by identification of a crystal phase by the electron diffraction which used the above-mentioned nano beam electron diffractograph. That is, it checked that it was soft magnetism by identifying α -Fe mold crystal and a Fe₃B mold crystal. Similarly, it checked that it was hard magnetism by identifying a Nd₂Fe₁₄B₁ mold tetragonal-system crystal phase.

[0097] Area % of said alloy organization is set to observation by a transmission electron microscope (TEM) etc., and means the area rate within a two-dimensional visual field.

[0098] The value measured by the chemical analysis showed the chemical composition of the particle which constitutes rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[0099] The value measured with the sample oscillatory type magnetometer VSM (Riken electronic incorporated company make) showed the magnetic properties of rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[0100] Moreover, beforehand, after the magnetic properties of a bond magnet gave pulse magnetization of about 50 kOe(s), the value measured by the B-H curve tracer (Toei Industry, Inc. make) showed them.

[0101] The Curie point of rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder was performed by measuring the temperature change of magnetization using the equipment which set to the sample oscillatory type magnetometer VSM (Toei Industry, Inc. make) the case and heating heater as for which the sample bearing bar and device under test by the quartz with a thermocouple are made to a vacuum ambient atmosphere. That is, after magnetizing a device under test in the magnetic field of 10 or more kOes, temperature was raised applying the magnetic field of 1kOe, the value of the magnetization accompanying a temperature rise was recorded, and temperature of the point that the magnetization curve of a hard phase intersected the magnetization curve of a soft phase clearly was made into Curie temperature.

[0102] The rust-proofing nature of magnet alloy particle powder is JIS. Z It carried out by the salt spray test approach based on 2371. That is, it took out for every fixed time amount, the existence of rusting and

the situation of an increment and expansion of a rusting point were observed with the scanning electron microscope (SEM), and elapsed time until rusting occupies 10 area % showed.

[0103] When rusting is carried out in between or how it sets to an observation side, and a rusting point is increased and expanded estimated the corrosion resistance of a bond magnet under the environment of 80 degrees C and 90% relative humidity. It is the optical microscope visual field of being 50 times many as this, quantitatively, and elapsed time until rusting occupies 10 area % showed.

[0104] After the consistency of a bond magnet cooled enough the cylindrical compression-molding bond magnet after hardening in room temperature of about 25 degrees C, it measured the height and cross-section diameter of the cylinder in a three or more place micrometer, respectively, and calculated the cylindrical volume from the average. Next, the value which measured the weight of the compression-molding bond magnet concerned with the electronic balance, and ******(ed) the weight value (g) with bulking value showed.

[0105] Hereafter, manufacture of rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder is explained using drawing 1. First, so that it may become the presentation of Nd₇Fe_{83.5}Co₄Nb₁Ga_{0.5} B4 by the atomic ratio 169.2g (99.9% of purity) (Product made from a Japanese Yttrium) of metal neodium pieces, the piece of metal iron (electrolytic iron, 99.9% of purity) (Showa Denko Make) -- 766.6g the piece of metal cobalt (99.9% of purity, Sumitomo Metal Mining Co., Ltd. make) -- 38.76g and the piece of a metal niobium -- 15.24g and the piece of a metal gallium -- 5.73g and the piece of crystal boron -- weighing capacity of the 7.13g was carried out, respectively, and AUW was set to about 1kg. These were cast in the RF dissolution in the argon gas reduced pressure ambient atmosphere, and the 1kg rough alloy was obtained.

[0106] Next, 1kg of obtained rough alloys was put into the crucible 1 made from an alumina, melting was carried out at 1350 degrees C by high-frequency heating, and it considered as the alloy molten metal 2. Outflow dropping of this alloy molten metal 2 is carried out from the nozzle 3 made from an alumina, argon gas 4 was sprayed by the pressure of 20kg/cm², and the drop 6 of an alloy molten metal was made to form from the atomization nozzle 5 to the dropped alloy molten metal 2. The drop 6 of this alloy molten metal was made to collide with the copper cone rotation cooling object 7 of diameter of roll 200mmphi arranged in the flow direction of this drop, 120 cone angles, and rotational frequency 7200rpm, and the quenching congelation particle powder 8 was obtained.

[0107] The obtained quenching congelation particle powder was what has 15 micrometers in 250 micrometers of diameters of an average major axis, 150 micrometers of diameters of an average minor axis, and average thickness, the average 1.7 of the ratio of the diameter of a minor axis, and the diameter of a major axis, and the shape property of the average aspect ratio 17. It has checked that it was the quenching congelation particle powder which consists of a foliaceous particle of a flat tree as it was shown in the scanning electron microscope photograph (x85) of drawing 2, when observation according this powder to a scanning electron microscope was carried out.

[0108] The obtained quenching congelation particle powder showed the peak [broadcloth on the whole] as a result of the X diffraction. As a result of examining this X diffraction result and a high-resolution transmission electron microscope observation result collectively, it has checked that most consisted of an amorphous phase at least. moreover, the result of having measured the configuration element ratio of this alloy particle powder by the chemical analysis -- Nd₇Fe_{83.5}CoNb₁Ga₀ B4 it is -- it was checked that it is almost equal to a preparation presentation ratio.

[0109] The above-mentioned quenching congelation particle powder was enclosed with the quartz tube under the vacuum of 5×10^{-2} Torr, and heat-treatment was performed for 3 minutes at the temperature of 750 degrees C. The clear peak based on two kinds of crystal structures, α -Fe mold (peak expressed with A) and $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold (peak expressed with B), was detected as a result of the analysis of the X diffraction pattern which shows the rare earth-iron-boron system alloy particle powder after this heat treatment to drawing 3 obtained as a result of X diffraction measurement. Moreover, from the electron diffraction pattern shown in drawing 4, there is a halo which shows existence of an amorphous phase with the spot which shows crystallinity, and or and remaining were ****(ed) a little also for the amorphous phase.

[0110] About the rare earth-iron-boron system alloy particle powder after the above-mentioned heat treatment, the fine structure was observed using the high-resolution transmission electron microscope, the nano beam electron diffractograph, and the energy dispersive X-ray analyzer. Consequently, the hard magnetism crystal phase in which the soft magnetism crystal phase in which an alloy organization contains α -Fe is 72 area % extent, and contains $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ to all crystal phases was 28 area % extent to all crystal phases, and when total of these crystal phases made the whole two-dimensional visual field 100 area %, it was 91 area % to all alloy organizations. Therefore, the remaining 9 area % was a soft magnetism amorphous phase.

[0111] Moreover, the range of the diameter of crystal grain of the soft magnetism crystal phase containing α -Fe or the solid solution is 20-45nm, the range of the diameter of crystal grain of the hard magnetism crystal phase containing $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold was 15-40nm, the deposit of each phase was promoted by heat treatment from the mixed phase of the crystal phase before heat-treatment, and an amorphous phase, and it was observed that crystal growth has also happened. Furthermore, each element of Nd and B was condensed by the residual amorphous phase, and it has checked to it that they are 11.3 atoms % and 7.8 atoms %, respectively from the analysis result.

[0112] As a result of measuring the room temperature magnetic properties of the rare earth-iron-boron system alloy particle powder after the above-mentioned heat treatment with a sample oscillatory type magnetometer, for coercive force iH_c , 4.7kOe(s) and a residual magnetic flux density B_r were [11.2kG(s) and maximum magnetic energy (product BH) max] 17.4MGOe(s).

[0113] Moreover, in order to investigate the rust-proofing engine performance of the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder obtained the account of a top, the salt spray test was performed and the rate of surface ratio of the rust which takes out every 12 hours and is occupied on the foliaceous particle front face of a flat tree was observed with the scanning electron microscope. Consequently, elapsed time until rusting occupies 10 area % is 72 hours after, and it has checked that the above-mentioned rare earth magnet alloy particle powder was excellent also in rust-proofing nature.

[0114] After melting the 98g of the above-mentioned rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder, and epoxy resin XW-2214(trade name, Japan pel NOx incorporated company make) 2g by the methyl ethyl ketone of optimum dose and often mixing rare earth alloy particle powder, the desiccation evaporation of the methyl ethyl ketone was carried out, and it considered as the mixture for compression molding (it is equivalent to 98 % of the weight of rare earth alloy particle powder, and 2 % of the weight of epoxy resins.).

[0115] The 3.3g of the above-mentioned mixture was put into the press fixture for cylindrical samples with a diameter of 10mm, it pressed by the pressure of about 7 ton/cm^2 ; and the cylindrical green compact

with a diameter [of 10mm] and a die length of about 7mm was obtained.

[0116] The above-mentioned green compact was heat-treated at 150 degrees C for 1 hour, the epoxy resin was stiffened, and the compression-molding bond magnet of 3 was obtained the consistency of 6.3g/cm.

[0117] After magnetizing about 50 kOe(s) with a pulse magnetization machine to the compression-molding bond magnet obtained the account of a top, as a result of measuring the magnet property of a room temperature with a B-H marker, for the residual magnetic flux density Br, 9.1kG(s) and coercive force iHc were [4.6kOe(s) and maximum magnetic energy (product BH) max] 10.5MGOe(s).

[0118]

[Function] The most important point makes the drop of an alloy molten metal generate by spraying gas on an outflow alloy molten metal in this invention. The process of grinding of the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder which consists of a foliaceous particle of a flat tree by carrying out cooling coagulation using the rotation cooling object of the cone mold arranged in the flow direction of the drop concerned or a disk mold before the drop concerned congeals is not needed. It is the fact that it can obtain very efficient.

[0119] the object for bond magnets concerning this invention -- flat -- leaves -- the particle shape of ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder is not a curved surface -- flat -- leaves -- powder covers, since it is a **, it can excel in the leafing effectiveness which is effectiveness, and can be made high restoration at the time of bond magnet manufacture, consequently big saturation magnetic flux density can be obtained.

[0120] Moreover, this invention person considers that why the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder excellent in rust-proofing nature is obtained is because an amorphous phase encloses the perimeter of the soft magnetism crystal phase which mainly bears a magnetic role, or a hard magnetism crystal phase, and exists and the moderate amount moreover stabilizes and exists.

[0121] In addition, when performed by the conventional single roll method as an approach of producing the rare earth magnet alloy particle powder for bond magnets, thickness is irregular, and a thin band with a curved surface needs to be made and it is necessary to grind and use this at the time of bond magnet manufacture. Moreover, for spherical particle powder being obtained and filling up high density, when performed by the atomization method, it is unsuitable, also when this is ground, it becomes the particle of an indeterminate form, and it is not suitable for filling up high density.

[0122] By the way, the manufacturing method (JP,2-34706,A, JP,2-93007,A) which obtains thin film integrated circuit powder, such as glass powder and stainless steel powder, as the pigment for coatings or a filler for plastics is known. In this manufacturing method, by carrying out cooling coagulation of the drop of melt with an umbrella type, a horning die, or a disc-like rotation cooling object, thin film integrated circuit powder is obtained, the leafing phenomenon arranged in parallel with a paint film side happens good, a paint film side is covered without a clearance, and good corrosion resistance and weatherability are given.

[0123]

[Example] Next, the example of a comparison is given in an example list.

Examples 1-27, examples 1-3 of a comparison;

[0124] Rare earth magnet alloy particle powder was obtained like the gestalt of implementation of said invention except having changed various the <manufacture of rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder> example 1 - 27 manufacture alloy presentation, the rotational frequencies of the rotation

cooling object in the production process of alloy particle powder and spraying argon gas pressure, and subsequent heat treatment temperature.

[0125] The rare earth magnet alloy particle powder obtained in the examples 1-27 observed the phase structure of an alloy organization as well as the gestalt of implementation of said invention.

[0126] Consequently, the hard magnetism crystal phase in which the soft magnetism crystal phase containing αFe is the range of 18 - 75 area %, and contains $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ to all crystal phases was the range of 90 - 99 area % to all alloy organizations, when it is the range of 25 - 82 area % and total of these crystal phases made the whole two-dimensional visual field 100 area % to all crystal phases. Therefore, the soft magnetism amorphous phase was the range of 1 - 10 area %.

[0127] Moreover, the diameter of crystal grain of the soft magnetism crystal phase which consists of one crystal phase of the mixed phases of αFe , the solid solution (α solid solution which consists of Fe and M), or the αFe and the solid solution It is the range of 5-100nm, and the range of the diameter of crystal grain of the hard magnetism crystal phase which consists of a $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ mold tetragonal-system crystal phase was 5-100nm, each phase deposited by heat treatment from the amorphous phase before heat-treatment, and crystallizing was observed. Furthermore, rare earth and each element of B were condensed by the residual amorphous phase, and it has checked to it that they are the range of 10 - 15 atom % and the range of 7 - 9 atom %, respectively from the analysis result.

[0128] Many properties of the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder obtained in Table 1 and 2 in the main manufacture conditions at this time are shown in Table 3 and 4..

[0129] The example 1 (single roll type melt quenching method: Japanese Standards Association issue "talk of amorphous metal" (1988) the 36- 37 pages) of a comparison

This molten metal was thinly extended on the periphery front face of the rotation cooling object of the roll mold which obtain an alloy molten metal like the gestalt of implementation of said invention, and this alloy molten metal is made to flow out of a nozzle with gas pressure, is arranged in the outflow direction of the alloy molten metal concerned, and rotates to a lengthwise direction, and it made thin band-like one carry out cooling coagulation except having considered as the alloy presentation of an example 20. The obtained cooling congelation was a thin band with a thickness of 30-50 micrometers. The thin object concerned was used as powder 500 micrometers or less using machine grinding and a screen. The particle shape of this powder was GAREKI-like as a result of electron microscope observation. The manufacture conditions and many properties of GAREKI-like powder which were acquired are shown in Tables 2 and 4.

[0130] The cooling congelation was obtained like the gestalt of implementation of said invention except having considered as the alloy presentation of example of comparison 2 example 20, and having not sprayed gas on an outflow alloy molten metal in generation of quenching congelation particle powder. This cooling congelation has the uneven thickness of about 100 micrometers thru/or about 1mm, and was presenting the tabular gestalt at which it swerved and turned so that it might lenticulate. The coagulation object concerned was used as powder 500 micrometers or less using machine grinding and a screen. Powdered manufacture conditions and many properties which were acquired are shown in Tables 2 and 4.

[0131] The example 3 (the gas atomizing method: Maruzen issue "a metal handbook" (the 932-933rd pages of 1990 issue)) of a comparison

Except having considered as the alloy presentation of an example 20, obtained the alloy molten metal like the gestalt of implementation of said invention, this alloy molten metal was made to flow out of a nozzle,

and the inside of such a sufficiently large chamber that it does not collide until it makes the drop of an alloy molten metal generate and the drop concerned congeals by spraying gas on the outflow alloy molten metal concerned was flown. During the flight, the rapid solidification of the above-mentioned drop was carried out, and it fell. The obtained body was spherical powder which has the diameter of several micrometers thru/or the large particle size distribution of the range of hundreds of micrometers. Powdered manufacture conditions and many properties which were acquired are shown in Tables 2 and 4.

[0132]

[Table 1]

実施例及び比較例	希土類磁石合金粒子粉末の製造条件			
	製造合金組成	回転冷却体		加熱処理温度(°C)
		回転冷却体の形状	回転数 (rpm)	
実施例1	Nd ₁ Fe ₈₂ Co ₈ Ti ₁ B ₁	円錐型	7200	700
実施例2	Nd ₁ Fe ₈₃ Co ₈ V ₁ B ₁	円錐型	7200	700
実施例3	Nd ₁ Fe ₈₃ Co _{8.5} Cr _{0.5} B ₁	円錐型	7200	680
実施例4	Nd ₁ Fe _{82.5} Co ₂ Mn _{2.5} B ₁	円錐型	7200	680
実施例5	Nd ₁ Fe _{81.5} Co ₇ Cu _{0.5} B ₁	円錐型	7200	680
実施例6	Nd ₁ Fe _{80.5} Co ₃ Cr _{2.5} B ₁	円錐型	7200	700
実施例7	Nd ₁ Fe ₈₂ Co _{6.5} Zr _{0.5} B ₁	円錐型	7200	720
実施例8	Nd ₁ Fe _{83.5} Co _{4.5} Nb ₁ B ₁	円錐型	7200	720
実施例9	Nd ₁ Fe _{83.5} Co _{3.5} Mo ₂ B ₁	円錐型	7200	700
実施例10	Nd ₁ Fe ₈₀ Co _{8.7} Hf _{0.3} B ₁	円錐型	7200	740
実施例11	Nd ₁ Fe ₈₃ Co ₅ Ta ₁ B ₁	円錐型	7200	740
実施例12	Nd ₁ Pr ₁ Fe ₈₃ Co ₄ W ₂ B ₁	円錐型	7200	720
実施例13	Nd ₁ Pr ₁ Fe ₈₃ Co _{6.5} Si _{1.5} B ₁	円錐型	7200	700
実施例14	Nd ₁ Fe ₈₂ Co ₄ Nb ₁ V ₁ B ₁	円錐型	7200	760
実施例15	Nd ₁ Fe _{82.5} Co ₄ Nb ₁ Cu _{0.5} B ₁	円錐型	7200	780
実施例16	Nd ₁ Fe ₈₂ Co ₄ Cr ₁ Mn ₁ B ₁	円錐型	7200	720
実施例17	Nd ₁ Pr ₁ Fe _{83.5} Co ₄ Ti ₁ Ga _{0.5} B ₁	円錐型	7200	700
実施例18	Nd ₁ Pr ₁ Fe ₈₂ Co ₄ Ta ₁ Si ₁ B ₁	円錐型	7200	680
実施例19	Nd ₁ Pr ₁ Fe ₈₂ Co ₄ Nb _{1.1} B _{6.5}	円錐型	7200	720
実施例20	Nd ₁ Fe _{82.5} Co ₄ Nb ₁ Cu _{0.5} B ₅	円錐型	12000	780

[0133]

[Table 2]

実施例及び比較例	希土類磁石合金粒子粉末の製造条件			
	製造合金組成	回転冷却体		加熱処理温度(°C)
		回転冷却体の形状	回転数 (rpm)	
実施例21	Nd ₁ Fe _{82.5} Co ₄ Nb ₁ Cu _{0.5} B ₅	円錐型	1000	780
実施例22	Nd ₁ Fe _{80.5} Co ₄ Nb ₁ B _{6.5}	円錐型	7200	760
実施例23	Nd ₁ Fe ₈₀ Co ₄ Nb _{1.5} B _{6.5}	円錐型	7200	760
実施例24	Nd ₁ Fe _{80.5} Co ₄ Nb ₂ B _{6.5}	円錐型	7200	760
実施例25	Nd ₁ Fe ₈₀ Co ₄ Nb _{2.5} B _{6.5}	円錐型	7200	760
実施例26	Nd ₁ Fe _{80.5} Co ₄ Nb ₁ B ₇	円錐型	7200	720
実施例27	Nd ₁ Fe ₈₀ Co ₄ Nb ₁ B ₇	円錐型	7200	720
比較例1	Nd ₁ Fe _{82.5} Co ₄ Nb ₁ Cu _{0.5} B ₅	単ロール式液体急冷法		780
比較例2	Nd ₁ Fe _{82.5} Co ₄ Nb ₁ Cu _{0.5} B ₅	円錐型	7200	780
比較例3	Nd ₁ Fe _{82.5} Co ₄ Nb ₁ Cu _{0.5} B ₅	ガスアトマイズ法		780

[0134]

[Table 3]

実施例及び比較例	磁子形状	粉末磁石合金磁子母体の特性										成形条件						成形後 (室温)の 特性
		平均粒径 μm	平均長さ μm	平均幅 μm	平均長さ/幅 倍率	平均角 °(外法 長径比/厚さ)	合金組成	合金組成中の元素組成(atomic%)			成形温度 °C	成形圧力 MPa	成形時間 min	最大圧力 1"=100 (MPa)	最大圧力 1"=100 (MPa)	最大圧力 1"=100 (MPa)		
								鉄素子組成(atomic%)										
								鉄素子組成 品物 組成	鉄素子組成 品物 組成	鉄素子組成 品物 組成								
実施例1	扁平水母状	200	150	15	1.7	17	Fe-10%Ni-10%B	72	28	91	8	10.0	4.0	13.2	12.8	60		
実施例2	扁平水母状	200	150	14	1.3	18	Fe-10%Ni-10%B	74	26	91	8	11.1	4.0	13.3	12.1	60		
実施例3	扁平水母状	200	150	15	1.8	17	Fe-10%Ni-10%B	76	24	90	10	9.0	4.0	13.0	14.2	60		
実施例4	扁平水母状	200	145	17	1.8	16	Fe-10%Ni-10%B	72	28	91	8	10.0	4.1	13.1	13.1	60		
実施例5	扁平水母状	200	155	17	1.6	18	Fe-10%Ni-10%B	74	26	91	8	10.0	4.1	13.0	13.1	60		
実施例6	扁平水母状	200	155	13	1.5	19	Fe-10%Ni-10%B	75	25	92	8	10.2	4.2	13.4	13.0	60		
実施例7	扁平水母状	200	150	13	1.4	14	Fe-10%Ni-10%B	70	30	90	10	9.0	4.1	13.0	13.0	60		
実施例8	扁平水母状	200	150	13	1.5	13	Fe-10%Ni-10%B	72	28	90	10	11.1	4.1	13.4	12.9	60		
実施例9	扁平水母状	200	155	33	1.4	10	Fe-10%Ni-10%B	75	25	92	8	10.1	4.1	13.1	13.0	60		
実施例10	扁平水母状	200	150	13	1.6	16	Fe-10%Ni-10%B	70	30	90	10	10.2	4.2	13.3	13.0	60		
実施例11	扁平水母状	200	155	25	1.6	12	Fe-10%Ni-10%B	74	26	91	8	9.0	4.5	13.5	12.8	60		
実施例12	扁平水母状	200	150	33	1.4	10	Fe-10%Ni-10%B	70	30	91	8	10.0	4.4	13.3	12.9	60		
実施例13	扁平水母状	200	155	13	1.6	19	Fe-10%Ni-10%B	71	29	91	8	11.1	4.1	13.1	13.2	60		
実施例14	扁平水母状	200	200	24	1.4	12	Fe-10%Ni-10%B	70	30	90	10	11.3	4.1	13.1	13.0	60		
実施例15	扁平水母状	200	160	22	1.6	13	Fe-10%Ni-10%B	74	26	91	8	11.6	4.0	13.1	13.2	60		
実施例16	扁平水母状	200	155	14	1.6	18	Fe-10%Ni-10%B	75	25	91	8	10.2	4.0	13.7	13.0	60		
実施例17	扁平水母状	200	155	14	1.7	18	Fe-10%Ni-10%B	73	27	90	8	10.0	4.0	13.0	13.0	60		
実施例18	扁平水母状	200	200	23	1.4	11	Fe-10%Ni-10%B	74	26	91	7	10.1	4.0	13.2	13.2	60		
実施例19	扁平水母状	200	200	23	1.6	11	Fe-10%Ni-10%B	72	28	90	10	10.0	4.1	13.3	13.2	60		
実施例20	扁平水母状	120	95	6	1.3	20	Fe-10%Ni-10%B	74	26	90	10	10.3	3.0	13.5	13.0	60		

[0135]

[Table 4]

実施例及び比較例	磁子形状	粉末磁石合金磁子母体の特性														成形後 (室温)の 特性
		平均粒径 μm	平均長さ μm	平均幅 μm	平均長さ/幅 倍率	平均角 °(外法 長径比/厚さ)	合金組成	合金組成中の元素組成(atomic%)			成形条件					
								鉄素子組成(atomic%)			成形温度 °C	成形圧力 MPa	成形時間 min	最大圧力 1"=100 (MPa)		
								鉄素子組成 品物 組成	鉄素子組成 品物 組成	鉄素子組成 品物 組成						
実施例21	扁平水母状	420	310	60	1.2	5.0	Fe-10%Ni-10%B	72	28	90	8	11.1	4.1	13.1	12.7	60
実施例22	扁平水母状	470	420	60	1.1	6.1	Fe-10%Ni-10%B	69	31	91	8	10.0	4.1	13.0	13.0	60
実施例23	扁平水母状	420	350	80	1.2	5.4	Fe-10%Ni-10%B	64	46	92	8	10.2	4.1	13.1	13.1	60
実施例24	扁平水母状	330	310	30	1.0	9.3	Fe-10%Ni-10%B	43	57	92	8	9.0	4.1	13.1	13.2	60
実施例25	扁平水母状	277	240	61	1.1	6.4	Fe-10%Ni-10%B	39	61	93	8	9.0	4.0	13.1	13.2	60
実施例26	扁平水母状	290	150	34	1.0	6.5	Fe-10%Ni-10%B	21	79	96	4	10.2	4.1	13.1	13.0	60
実施例27	扁平水母状	370	193	49	2.1	6.6	Fe-10%Ni-10%B	19	81	99	1	9.0	4.0	13.1	13.0	60
実施例28	扁平水母状	—	—	—	—	—	Fe-10%Ni-10%B	72	28	91	8	10.7	4.1	13.1	13.0	60
実施例29	扁平水母状	—	—	—	—	—	Fe-10%Ni-10%B	73	27	92	8	10.0	3.1	13.1	13.0	60
実施例30	球状	—	—	—	—	—	Fe-10%Ni-10%B	73	27	92	8	9.0	4.0	13.1	13.1	60

[0136] <Bond magnet with which rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder is mixed>
The bond magnet was obtained like the gestalt of implementation of said invention except having changed various classes of examples 28-54 and magnet alloy particle powder used example of comparison 4-6.

[0137] The main manufacture conditions and many properties at this time are shown in Table 5.

[0138]

[Table 5]

実施例及び比較例	使用合金の組成	磁石の特性				耐食性試験 塩酸中での腐食時間 (時間)
		coercive force iHc (kOe)	residual magnetic flux density Br (kG)	maximum magnetic energy product (BH) _{max} (MGOe)	density (g/cm ³)	
実施例1	実施例1	3.8	6.1	9.7	6.3	145
実施例2	実施例2	4.7	6.2	10.6	6.3	187
実施例3	実施例3	4.6	7.2	10.1	6.3	150
実施例4	実施例4	5.0	6.4	10.0	6.4	165
実施例5	実施例5	3.0	7.3	10.8	6.2	172
実施例6	実施例6	4.1	8.1	9.5	6.2	144
実施例7	実施例7	4.4	7.4	9.0	6.4	140
実施例8	実施例8	4.5	8.3	11.3	6.3	155
実施例9	実施例9	3.9	7.2	10.7	6.2	148
実施例10	実施例10	4.2	7.1	9.7	6.3	180
実施例11	実施例11	4.3	7.2	9.9	6.3	146
実施例12	実施例12	4.3	7.2	10.4	6.4	140
実施例13	実施例13	4.5	8.2	11.0	6.2	146
実施例14	実施例14	4.5	8.0	11.4	6.5	168
実施例15	実施例15	4.4	8.3	11.0	6.4	182
実施例16	実施例16	4.7	8.4	10.7	6.2	172
実施例17	実施例17	4.5	8.4	10.1	6.2	122
実施例18	実施例18	4.6	8.0	11.0	6.3	126
実施例19	実施例19	5.2	7.8	11.8	6.3	132
実施例20	実施例20	3.7	7.7	9.6	6.4	212
実施例21	実施例21	4.6	8.4	10.8	6.3	128
実施例22	実施例22	4.0	7.3	9.8	6.3	120
実施例23	実施例23	6.7	7.4	11.2	6.3	125
実施例24	実施例24	6.0	7.4	11.3	6.3	147
実施例25	実施例25	6.5	7.3	12.4	6.2	140
実施例26	実施例26	6.4	7.3	12.5	6.2	135
実施例27	実施例27	6.1	7.7	11.6	6.3	138
比較例1	比較例1	4.5	7.1	9.2	6.0	60
比較例2	比較例2	3.1	8.6	8.6	5.7	70
比較例3	比較例3	4.2	8.2	7.9	5.9	65

[0139] For 7.2 - 9.3kGauss and maximum energy product (BH) max, 9.5 - 12.5MGOe and a consistency were [coercive force iHc / 3.7 - 6.4kOe and a residual magnetic flux density Br / 6.2 - 6.5 g/cm³ and the corrosion resistance of the bond magnet obtained in the example of this invention] 132 - 212 hours.

[0140]

[Effect of the Invention] Since the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention has the big residual magnetic flux density Br and the high coercive force iHc, consequently its maximum magnetic energy (product BH) max is large, and it is excellent in rust-proofing nature and excellent in the leafing effectiveness, it is suitable as a charge of high performance bond magnet material.

[0141] And under 10 atom %, since it is few, the amount of rare earth can obtain the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention in favor of economical and an industrial target.

[0142] Furthermore, the bond magnet obtained using the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree concerning this invention It originates in the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree to be used having many above-mentioned properties. Since the consistency is large, while it has the big residual magnetic flux density Br and the high coercive force iHc, consequently maximum magnetic energy (product BH) max is large, and excellent in corrosion resistance, and being able to miniaturize, it is usable for various applications. Therefore, it can be said that the industrial availability of this invention is very large.

[Translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is the schematic diagram of the equipment which manufactures the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree in the gestalt of implementation of invention.

[Drawing 2] It is the scanning electron microscope photograph (x85) in which the particle shape of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree obtained with the gestalt of implementation of invention was shown.

[Drawing 3] It is the X diffraction pattern which showed the crystal structure of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree obtained with the gestalt of implementation of invention.

[Drawing 4] It is the electron diffraction pattern in which the crystal structure of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree obtained with the gestalt of implementation of invention was shown.

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-288807

(43)公開日 平成11年(1999)10月19日

(51)IntCl ⁶	識別記号	F I
H 0 1 F 1/06		H 0 1 F 1/06 A
B 2 2 F 1/00		B 2 2 F 1/00 Y
9/08		9/08 M
9/10		9/10
C 2 2 C 38/00	3 0 3	C 2 2 C 38/00 3 0 3 D

審査請求 未請求 請求項の数5 O L (全 14 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願平11-28997	(71)出願人	000166443 戸田工業株式会社 広島県広島市西区横川新町7番1号
(22)出願日	平成11年(1999)2月5日	(72)発明者	浜野 正昭 広島県大竹市明治新開1番4戸田工業株式 会社大竹工場内
(31)優先権主張番号	特願平10-41074	(72)発明者	山崎 実 広島県大竹市明治新開1番4戸田工業株式 会社大竹工場内
(32)優先日	平10(1998)2月6日	(72)発明者	水口 博崇 広島県大竹市明治新開1番4戸田工業株式 会社大竹工場内
(33)優先権主張国	日本 (J P)		

(54)【発明の名称】 ボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末及びその製造法並びにボンド磁石

(57)【要約】

【課題】 大きな残留磁束密度 B_r と高い保磁力 iH_c を有し、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ が大きく、防錆性に優れ、リーフィング効果に優れたボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末及びその製造法並びに該希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を用いたボンド磁石を提供する。

【解決手段】 平均長軸径が $60\sim500\mu m$ 、平均短軸径が $50\sim460\mu m$ 、平均厚さが $3\sim100\mu m$ 、平均軸比が $1.1\sim10$ 、平均アスペクト比が $3\sim100$ である偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末は、希土類-鉄-ボロン系の粗合金を、加熱溶解して合金溶湯とした後、ノズルから流出させ、当該流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴を円錐型又は円盤型の回転冷却体の表面に衝突させることによって冷却凝固させて急凝固物粒子粉末とし、次いで、 $600\sim850^\circ C$ の温度範囲で加熱処理することにより得られる。

(2)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 粒子形状が扁平木の葉状の粒子からなる希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末であって、平均長軸径が60～500 μ m、平均短軸径が50～460 μ m、平均厚さが3～100 μ m、平均軸比（長軸径／短軸径）が1.1～10、平均アスペクト比（長軸径／厚さ）が3～100であるボンド磁石用扁平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末。

【請求項2】 希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子の合金組成が式 $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ （ただし、Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及びCeから選ばれる希土類元素の一種又は二種以上、Mは、Ti、V、Cr、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Mn、Cu、Ga、Ag及びSiから選ばれる元素の一種又は二種以上、x、y、z及びwは、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 、 $1.0 \leq y \leq 9.0$ 、 $0.1 \leq z \leq 5$ 、 $2 \leq w \leq 7$ 、 $9 \leq (x+w)$ 、 $5 < (y+z)$ ）で表わされる組成を有し、且つ、 αFe 、固溶体（ αFe とMとからなる固溶体）又は αFe と固溶体との混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性結晶相とNd₂Fe₁₄B₁型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相とのそれぞれが、軟磁性非晶質相中に析出している合金組織を有しており、しかも、前記軟磁性非晶質相が全合金組織に対し10面積%以下であって、前記軟磁性結晶相が前記軟磁性結晶相と前記硬磁性結晶相とを合わせた全結晶組織に対して10面積%以上であり、残部が前記硬磁性結晶相である請求項1記載のボンド磁石用扁平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末。

【請求項3】 保磁力iHcが3.5kOe以上、残留磁束密度Brが9.5kG以上及び最大磁気エネルギー積(BH)_{max}が13MGOe以上である請求項1又は2記載のボンド磁石用扁平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末。

【請求項4】 式 $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ （ただし、Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及びCeから選ばれる希土類元素の一種又は二種以上、Mは、Ti、V、Cr、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Mn、Cu、Ga、Ag及びSiから選ばれる元素の一種又は二種以上、x、y、z及びwは、それぞれ $5 \leq x \leq 10$ 、 $1.0 \leq y \leq 9.0$ 、 $0.1 \leq z \leq 5$ 、 $2 \leq w \leq 7$ 、 $9 \leq (x+w)$ 、 $5 < (y+z)$ ）で表わされる組成割合となる様に製造した粗合金を、加熱溶解して合金溶湯とした後、当該合金溶湯をノズルから流出させ、当該流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固する前に、当該液滴の流動方向に配置された円錐型又は円盤型の回転冷却体の表面に該液滴を衝突させることによって冷却凝固させて扁平木の葉状の粒子からなる急冷凝固物粒子粉末とし、次いで、当該急冷凝固物粒子粉末を600～850℃の温度範囲で加熱処理することを特徴とする請求項1乃至3の

いずれかに記載のボンド磁石用扁平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の製造法。

【請求項5】 請求項1乃至3のいずれかに記載のボンド磁石用扁平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を結合剤樹脂中に分散してなるボンド磁石であって、当該扁平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末が85～99重量%の割合で混合されていることを特徴とするボンド磁石。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、大きな残留磁束密度Br、殊に、9.5kG以上と、高い保磁力iHc、殊に、3.5kOe以上とを有し、その結果、最大磁気エネルギー積(BH)_{max}が大きく、防錆性に優れ、且つ、リーフィング効果に優れたボンド磁石用扁平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末及びその製造法並びに該希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を用いたボンド磁石に関するものである。

【0002】

【従来の技術】ボンド磁石は、その形状自在性や高寸法精度などの利点があるため、従来から電気製品や自動車部品等の各種用途に広く使用されているが、近年、電気製品や自動車部品の小型・軽量化に伴って、これに使用されるボンド磁石自体の小型化が強く要求されている。

【0003】ボンド磁石の小型化のためには、磁石の高性能化、即ち、大きな残留磁束密度Brと高い保磁力iHcとを有し、その結果、最大磁気エネルギー積(BH)_{max}が大きいことが強く要求されている。

【0004】周知の通り、バリウムフェライトやストロンチウムフェライト等のマグネトブランバイト型フェライトを用いたボンド磁石（以下、「フェライトボンド磁石」という。）は、フェライト粉末が酸化物であるため、耐食性に優れており、また、バリウム、ストロンチウム等の酸化物や鉄酸化物等の安価な原料を用いて製造されるので、経済的であり、広く使用されている。

【0005】しかし、このフェライトボンド磁石の磁気特性は、通常、残留磁束密度Brが2～3kG程度、保磁力iHcが2～3kOe程度、最大磁気エネルギー積(BH)_{max}が1.6～2.3MGOe程度であって、使用される機器の小型・軽量化には十分なものではない。

【0006】磁石の高性能化と低価格化への要求はとどまるところがなく、1982年に希土類元素の内でも比較的低価格であるNdを用いたNd-鉄-ボロン系磁石合金が、住友特殊金属（株）と米国ゼネラルモーターズによってほぼ同時に開発されて以来、広く各種用途に応用されており、ボンド磁石への展開も行われている。さらにその磁気特性の向上を求めて希土類-鉄-ボロン系交換スプリング磁石合金の開発がさかんであり、一部は既に実用化されている。

(3)

3

【0007】前記交換スプリング磁石は、鉄 (α Fe) 若しくは鉄化合物と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型正方晶化合物との交換相互作用により、磁気的なスプリング現象を示すもので、その特徴は、低い希土類含有量と大きな残留磁束密度 B_r を有することであり、コストパフォーマンスに優れた磁石となる可能性が高いものとして期待されている。

【0008】即ち、Nd 等の希土類量が 10 原子%未満の希土類-鉄-ボロン系交換スプリング磁石合金は、例えば、ゼネラルモーターズが開発した市販の“MQP”

(商品名) のように Nd 等の希土類量が化学量論組成に近い 10~15 原子%の希土類-鉄-ボロン系磁石合金に比べ、磁気特性上のポテンシャルが高く、また、高価な希土類の含有量を低減できるため経済的であるという特徴を有する。

【0009】前記 Nd 等の希土類量が 10 原子%未満の希土類-鉄-ボロン系交換スプリング磁石合金には、軟磁性相として α Fe を含む系と Fe_3B や Fe_2B を含む系とがある。前者は、一般に残留磁束密度 B_r が 10~13 kG と大きい保磁力 iH_c は高々 3.5 kOe 未満と低いものであり、後者は、一般に保磁力 iH_c が 3.5~7.7 kOe と比較的高いが、残留磁束密度 B_r が 10 kG 程度以下であるため、“MQP” と比べると残留磁束密度 B_r は大きい α Fe 主体系に比べて低いものである。

【0010】ところで、希土類-鉄-ボロン系磁石合金を用いたボンド磁石の主な用途である小型モーター等の分野においては、モーターの小型化と使用磁石の磁気的安定性の観点から、残留磁束密度 B_r と保磁力 iH_c のバランスがとれた磁気特性であること、即ち、残留磁束密度 B_r が 9.5 kG 以上、保磁力 iH_c が 3.5 kOe 以上であることが強く要求されている。

【0011】また、Nd 等の希土類を含む磁石合金は、空気中で酸化されて次第に安定な酸化物を生成しやすく、防錆性に劣るという欠点がある。そのため、Nd 等の希土類を含む磁石合金を用いて製造されたボンド磁石は、耐食性が劣るので、一般には樹脂系のディッピング、スプレーコーティング、電着塗装あるいは金属メッキなどの防錆コーティングが施されるのが普通である。

【0012】従って、Nd 等の希土類を含む磁石合金の防錆性が向上すれば、上記のような用途においてもボンド磁石表面の防錆コーティングを簡略化又は省力化できることが期待でき、用途によっては、防錆コーティングを省略できる可能性もあるため、希土類-鉄-ボロン系磁石合金の防錆性の向上が強く要求されている。

【0013】また、ボンド磁石は、通常、磁石粉末を結合剤樹脂中に練り込んで成形することにより製造されるが、磁石粉末の形状が薄片状であれば容易に機械配向して結合剤樹脂中への充填密度を向上させることができることが知られている。しかし、薄片状粒子であっても湾

4

曲した面を有する場合には十分に充填密度を向上させることは困難となる。即ち、用途は異なるものの、特開平 2-34706 号公報の「・・・塗料用の粉末としては、一般に薄片状のものが好ましいとされている。すなわち、粉末を塗料用の樹脂に混合して刷毛塗り、スプレー等で塗布したとき、樹脂の硬化時に生じる表面張力によって粉末が塗面と平行に積層し（これをリーフィング現象という）、粉末による連続した被膜が形成され、素材を外気から遮断してより良好な耐食性耐候性を付与するからである。・・・」なる記載の通り、ボンド磁石の製造においても、粒子形状が曲面でない偏平木の葉状の粒子からなる磁石合金粒子粉末を用いることによりリーフィング効果によって、ボンド磁石中における粉末の充填密度を容易に上げることができるためボンド磁石の飽和磁束密度 B_r が向上し、ひいては最大磁気エネルギー積 $(BH)_{\max}$ を高めることが可能となる。そこで、リーフィング効果に優れた粒子形状が曲面でない偏平木の葉状の粒子からなる希土類磁石合金粒子粉末が望まれている。

【0014】即ち、大きな残留磁束密度 B_r と高い保磁力 iH_c とを有し、その結果、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{\max}$ が大きく、防錆性に優れ、且つ、リーフィング効果に優れた偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末が強く要求されているのである。

【0015】なお、Fe を主成分（ただし、91 原子%未満である。）とし、1 種又は 2 種以上の希土類元素（R）とホウ素（B）を含有する急冷永久磁石材料において、10 面積%以下の軟磁性非晶質相を含み、残部が R-Fe-B 系硬質磁性化合物を含む結晶質相からなる永久磁石材料は公知である（特開平 8-162312 号公報）。

【0016】

【発明が解決しようとする課題】大きな残留磁束密度 B_r と高い保磁力 iH_c とを有し、その結果、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{\max}$ が大きく、防錆性に優れ、且つ、リーフィング効果に優れた希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末は、現在、最も要求されているところであるが、このような特性を有する希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末は未だ得られていない。

【0017】即ち、前出特開平 8-162312 号公報記載の希土類-鉄-ボロン系磁石合金は、同公報の「表 5」に残留磁束密度 B_r が 0.62~0.97 T (6.2~9.7 kG に相当する。) 程度、保磁力 iH_c が 0.16~0.21 MA/m (1.25~2.6 kOe に相当する。) 程度、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{\max}$ が 19.7~72.0 kJ/m³ (2.5~9.0 MG Oe に相当する。) 程度と記載されている通り、保磁力 iH_c が高々 3 kOe 程度、残留磁束密度 B_r が高々 10 kG 程度と低いものであった。

【0018】前出特開平 8-162312 号公報の実施

50

(4)

5

例2～4に記載の希土類-鉄-ボロン系磁石合金は、急冷薄帯を粉碎した後、真空中で押出加工して得られたバルク体であり、本発明に係る偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末とは形態が相違する。

【0019】そこで、本発明は、大きな残留磁束密度 B_r と高い保磁力 iH_c とを有し、その結果、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ が大きく、防錆性に優れ、且つ、リーフィング効果に優れたボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を得ることを技術的課題とする。

【0020】

【課題を解決するための手段】前記技術的課題は、次の通りの本発明によって達成できる。

【0021】即ち、本発明は、粒子形状が偏平木の葉状の粒子からなる希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末であって、平均長軸径が $60 \sim 500 \mu m$ 、平均短軸径が $50 \sim 460 \mu m$ 、平均厚さが $3 \sim 100 \mu m$ 、平均軸比（長軸径／短軸径）が $1.1 \sim 10$ 、平均アスペクト比（長軸径／厚さ）が $3 \sim 100$ であるボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末である。

【0022】また、本発明は、希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子の合金組成が式 $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ （ただし、 R は、 Nd 、 Pr 、 Dy 、 Tb 及び Ce から選ばれる希土類元素の一種又は二種以上、 M は、 Ti 、 V 、 Cr 、 Zr 、 Nb 、 Mo 、 Hf 、 Ta 、 W 、 Mn 、 Cu 、 Ga 、 Ag 及び Si から選ばれる元素の一種又は二種以上、 x 、 y 、 z 及び w は、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 、 $1.0 \leq y \leq 9.0$ 、 $0.1 \leq z \leq 5$ 、 $2 \leq w \leq 7$ 、 $9 \leq (x+w)$ 、 $5 < (y+z)$ ）で表わされる組成を有し、且つ、 αFe 、固溶体（ αFe と M とからなる固溶体）又は αFe と固溶体の混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性結晶相と $Nd_2Fe_{14}B_1$ 型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相とのそれぞれが、軟磁性非晶質相中に析出している合金組織を有しており、しかも、前記軟磁性非晶質相が全合金組織に対し10面積%以下であって、前記軟磁性結晶相が前記軟磁性結晶相と前記硬磁性結晶相とを合わせた全結晶組織に対し10面積%以上であって、残部が前記硬磁性結晶相である前記ボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末である。

【0023】また、本発明は、保磁力 iH_c が $3.5 kOe$ 以上、残留磁束密度 B_r が $9.5 kG$ 以上及び最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ が $13 MGOe$ 以上である前記いずれかのボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末である。

【0024】また、本発明は、式 $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ （ただし、 R は、 Nd 、 Pr 、 Dy 、 Tb 及び Ce から選ばれる希土類元素の一種又は二種以上、 M は、 Ti 、 V 、 Cr 、 Zr 、 Nb 、 Mo 、 Hf 、 Ta 、

6

W 、 Mn 、 Cu 、 Ga 、 Ag 及び Si から選ばれる元素の一種又は二種以上、 x 、 y 、 z 及び w は、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 、 $1.0 \leq y \leq 9.0$ 、 $0.1 \leq z \leq 5$ 、 $2 \leq w \leq 7$ 、 $9 \leq (x+w)$ 、 $5 < (y+z)$ ）で表わされる組成割合となる様に製造した粗合金を、加熱溶解して合金溶湯とした後、当該合金溶湯をノズルから流出させ、当該流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固する前に、当該液滴の流動方向に配置された円錐型又は円盤型の回転冷却体の表面に当該液滴を衝突させることによって冷却凝固させて偏平木の葉状の粒子からなる急冷凝固物粒子粉末とし、次いで、当該急冷凝固物粒子粉末を $600 \sim 850^\circ C$ の温度範囲で加熱処理することを特徴とする前記いずれかのボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の製造法である。

【0025】また、本発明は、前記いずれかのボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を結合剤樹脂中に分散してなるボンド磁石であって、当該偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末が $85 \sim 99$ 重量%の割合で混合配合されていることを特徴とするボンド磁石である。

【0026】本発明の構成をより詳しく説明すれば、次の通りである。

【0027】まず、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末について述べる。

【0028】本発明に係るボンド磁石用希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の粒子形状は偏平木の葉状であり、当該粉末の平均長軸径は $60 \sim 500 \mu m$ 、好ましくは $80 \sim 500 \mu m$ 、より好ましくは $100 \sim 500 \mu m$ であって、平均短軸径は $50 \sim 460 \mu m$ 、好ましくは $70 \sim 460 \mu m$ 、より好ましくは $85 \sim 460 \mu m$ であって、平均厚さは $3 \sim 100 \mu m$ 、好ましくは $5 \sim 95 \mu m$ であって、平均軸比（長軸径／短軸径）は $1.1 \sim 10$ 、好ましくは $1.1 \sim 5$ 、より好ましくは $1.1 \sim 3$ であって、平均アスペクト比（長軸径／厚さ）は $3 \sim 100$ 、好ましくは $3 \sim 50$ 、より好ましくは $3 \sim 30$ である。

【0029】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の合金組成について述べる。

【0030】前記合金組成は、式 $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ で表される。式中、 R は、 Nd 、 Pr 、 Dy 、 Tb 及び Ce から選ばれる希土類元素の一種又は二種以上である。残留磁束密度 B_r や保磁力 iH_c を考慮すれば、 Nd 、 Pr 、 $Nd-Pr$ 合金及びこれらに他の希土類元素が混合されたものが好ましく、 Nd 、 Pr が最も好ましい。ただし、上記以外の希土類元素が全希土類量に対して10原子%以下含まれていても差支えない。

(5)

7

【0031】R量は、 $5 \leq x \leq 10$ であり、好ましくは $5.5 \leq x \leq 9$ 、より好ましくは $6 \leq x \leq 8$ である。xが5未満の場合には、Nd₂Fe₁₄B₁型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相の析出量が不十分で、保磁力が3.5kOe以上にならず、10を越える場合には、αFe、固溶体(αFeとMとからなる固溶体)又はαFeと固溶体の混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性結晶相の析出量が不十分で、Br ≥ 10 kG以上の高残留磁束密度が得られない。

【0032】Fe量は、 $100-x-y-z-w$ で表され、全原子に対して69~86%の範囲である。69%未満の場合には、残留磁束密度Brが減少し、本発明の目的とする9.5kG以上が得られない。86%を越える場合には、相対的にR量やCo量が減少することになり、本発明の目的とする保磁力iHcが3.5kOe以上が得られない。

【0033】Coは、M元素とともに保磁力の向上、磁化の増大、防錆性の向上及びキュリー点の上昇による熱安定性の向上をもたらす必須の元素である。

【0034】Co量は、 $1.0 \leq y \leq 9.0$ であり、好ましくは $1.5 \leq y \leq 9.0$ 、より好ましくは $2.0 \leq y \leq 9.0$ である。1.0未満の場合には、保磁力やキュリー点の上昇が十分でなく熱安定性に劣る。9.0を越える場合には、鉄成分の減少による残留磁束密度Brの低下が顕著となり、10kG以上が得られない。

【0035】Mは、Ti、V、Cr、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Mn、Cu、Ga、Ag及びSiから選ばれる一種以上の元素であり、Nd₂Fe₁₄B₁型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相の結晶磁気異方性を高め、また、析出相の微細化効果により高い保磁力を得ることができる。また、αFe、固溶体(αFeとMとからなる固溶体)又はαFeと固溶体の混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性結晶相を安定化してボンド磁石の耐食性や熱安定性を改善をすることができる。

【0036】前記M元素の内、Mn、Cu、Ga、Ag及びSiは、他のM元素とともに添加すると、その相乗効果によってより高い保磁力を得ることができる。

【0037】M元素の量は $0.1 \leq z \leq 5$ であり、好ましくは $0.2 \leq z \leq 4$ 、より好ましくは $0.3 \leq z \leq 3.5$ である。1未満の場合には、保磁力の向上効果に乏しく、ひいては熱安定性に劣る。5を越える場合には、鉄系成分(Fe、Co)の減少によるBrの減少を招く。

【0038】前記M元素のうち、Ti、Zr、Nb、Hf、Ta、Si及びGaは、保磁力の向上に寄与するとともに、非晶質相を形成しやすく、合金組織中に非晶質相が安定に残存し、防錆性が発揮された磁石合金粒子粉末を得ることができ、これを用いることにより耐食性に優れたボンド磁石が得られる。

【0039】Bは、Nd₂Fe₁₄B₁型正方晶系結晶相か

8

らなる硬磁性結晶相を構成するために必須の元素であり、その量は、 $2 \leq w \leq 7$ であり、好ましくは $2.5 \leq w \leq 6.5$ 、より好ましくは $3 \leq w \leq 6.5$ である。2未満の場合には、Nd₂Fe₁₄B₁型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相の析出量が不十分となり、iHc ≥ 3.5 kOeとならない。7を越える場合には、Bが過剰となり残留磁束密度Brの減少を招く。

【0040】R量及びB量の和は、 $9 \leq (x+w)$ であり、好ましくは10以上である。9未満の場合には、急冷による十分な軟磁性非晶質相が形成されず、熱処理によってもiHc ≥ 3.5 kOeを実現できない。大きな残留磁束密度Brを保持することを考慮すれば、その上限値は18が好ましく、より好ましくは17である。

【0041】Co量及びM量の和は、 $5 < (y+z)$ であり、好ましくは5.1以上、より好ましくは5.5以上である。5以下の場合には、保磁力や熱安定性を向上させる効果が得られにくくなる。大きな残留磁束密度Brを保持することを考慮すれば、その上限値は11が好ましく、より好ましくは10である。

【0042】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の合金組織について述べる。

【0043】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子は、全合金組織に対し10面積%以下、好ましくは9面積%以下の軟磁性非晶質相を有している。軟磁性非晶質相の下限値は1面積%である。

【0044】軟磁性非晶質相が全合金組織の二次元的観察視野において10面積%を越える場合には、軟磁性結晶相や硬磁性結晶相との距離が大きくなるので、両相の間に働く磁氣的交換相互作用による磁氣的結合が弱められる結果、むしろ磁石特性を向上させる効果が得られない。軟磁性非晶質相の前記防錆効果を考慮すれば、その下限値は好ましくは1面積%である。

【0045】軟磁性非晶質相は、8~20原子%、好ましくは9~15原子%の希土類と70~90原子%、好ましくは70~85原子%の鉄又は鉄と上記元素Mとの合金と22原子%以下、好ましくは5~18原子%のボロンとからなる。この軟磁性非晶質相は、軟磁性を有しているとともに、結晶化のための加熱処理工程において、結晶粒の粗大成長を抑制し、微細な結晶相を形成させることができるので、合金全体の硬磁性を向上させることができる。

【0046】また、軟磁性結晶相と硬磁性結晶相とのそれぞれが軟磁性非晶質相中に島状に分散析出しているため、この軟磁性非晶質相は、主として磁氣的な役割を担う軟磁性結晶相や硬磁性結晶相の周囲を取り囲んでいるので酸化の進行を抑制するから、錆の進行を防げるバリアーとしての効果を奏し、磁石合金粒子の防錆性を向上させることができる。

50

(6)

9

【0047】軟磁性非晶質相は、非晶質相が通常有する機械的強度、化学的耐性及び防錆性等の効果も十分期待できる。

【0048】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末における軟磁性結晶相は、 α Fe、固溶体 (α FeとMとからなる固溶体) 又は α Feと固溶体の混合相のいずれかの結晶相からなり、軟磁性結晶相と硬磁性結晶相とを合わせた全結晶組織に対し10面積%以上含んでいる。軟磁性結晶相は、残留磁束密度 B_r の向上に寄与している。10面積%未満の場合には、本発明の目的とする大きな残留磁束密度 B_r を有する磁石合金粒子粉末を得ることができない。保磁力 iH_c を向上させる役割を担う硬磁性結晶相の比率を考慮すれば、その上限値は90面積%が好ましい。

【0049】軟磁性結晶相の平均結晶粒径は、5~100nmが好ましく、より好ましくは10~50nmの範囲である。

【0050】軟磁性結晶相には、 α Fe、固溶体 (α FeとMとからなる固溶体) 又は α Feと固溶体の混合相のいずれかの結晶相以外に Fe_3B 、 Fe_2B 、これらとMとの固溶体、更に、 Fe_2Zr などのFeとMとの金属間化合物が状態図的にあるいは製造工程上不可避免的に含まれることがあるが、本発明の目的とする諸特性を有する磁石合金粒子粉末を得る上では特に問題とはならない。

【0051】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子における硬磁性結晶相は、 $Nd_2Fe_{14}B_1$ 型正方晶系結晶相からなり、全結晶組織に対し90面積%未満である。

【0052】90面積%を越える場合は、軟磁性結晶相が少なくなり、大きな残留磁束密度 B_r が得られない。本発明の目的とする保磁力 iH_c 値を考慮すれば、その下限値は10面積%が好ましい。より好ましくは20~85面積%である。

【0053】前記硬磁性結晶相は、保磁力 iH_c を発現させる効果を奏する。また、M元素が一部この硬磁性結晶相中に入り、異方性定数を向上させ、結果として保磁力を向上させることがある。

【0054】硬磁性結晶相には、 $Nd_2Fe_{14}B_1$ 型化合物の他に状態図的に不可避に析出する微小の化合物相を含んでいてもよい。

【0055】硬磁性結晶相の平均結晶粒径は、5~100nm以下が好ましく、より好ましくは10~50nmの範囲である。

【0056】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末は、残留磁束密度 B_r が9.5kG以上、好ましくは10.0kG以上であり、保磁力 iH_c が3.5kOe以上、好ましくは4.0kOe以上を有し、最大磁気エネルギー積 (B

10

$H)_{max}$ が13MGOe以上、好ましくは15MGOe以上を有する。その上限値は、残留磁束密度 B_r が13kG、保磁力 iH_c が8kOe、最大磁気エネルギー積 ($BH)_{max}$ が25MGOeである。なお、上記の粉末の磁気特性の内、 B_r は圧粉体の B_r から密度補正して算出したものであり、($BH)_{max}$ の計算もこの B_r を用いて行った。

【0057】また、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末の防錆性は、JIS Z 2371に基づく塩水噴霧試験法により、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間が少なくとも50時間以上、好ましくは55時間以上、より好ましくは60時間以上であって、従来のNd-Fe-B系合金粒子粉末に比べて後出実施例に示すように明確に優れている。

【0058】次に、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末の製造法について述べる。

【0059】まず、式 $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ (ただし、Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及びCeから選ばれる希土類元素の一種又は二種以上、Mは、Ti、V、Cr、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Mn、Cu、Ga及びSiから選ばれる元素の一種又は二種以上、x、y、z及びwは、それぞれ、 $5 \leq x \leq 10$ 、 $1 \leq y \leq 9$ 、 $0.1 \leq z \leq 5$ 、 $2 \leq w \leq 7$ 、 $9 \leq (x+w)$ 、 $5 < (y+z)$ で表される組成割合となる様に、金属状態原料及び/又は合金状態原料を配合し、これを加熱溶解し、次いで、冷却固化することによって上記組成の粗合金が得られる。

【0060】前記金属状態原料としては、市販のものを使用すればよく、その形態は、粉末、塊状、片状、板状等の各種形態のものがあ、そのいずれも使用することができる。

【0061】前記合金状態原料としては、市販のものを使用すればよく、例えば、ボロン元素では、フェロボロン、希土類元素では、フェロネオジやミッシュメタルやジウムなどがある。その形態は、粉末、塊状、片状、板状等の各種形態のものがあ、そのいずれも使用することができる。

【0062】前記加熱溶解は、周知のアーク溶解法、高周波溶解法などにより行うことができ、真空中やアルゴンガス等の不活性雰囲気で行うのが好ましい。

【0063】次に、得られた前記粗合金を加熱溶解して合金溶湯とし、次いで、当該合金溶湯をノズルから流出させ、当該流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固する前に、当該液滴流動方向に配置された円錐型又は円盤型の回転冷却体の表面に該液滴を衝突させることによって冷却凝固させて偏平木の葉状の粒子からなる急冷凝固物粒子粉末とし、次いで、当該急冷凝固物粒子粉末を加熱処理によ

(7)

11

り結晶化を行えば、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を得ることができる。

【0064】前記溶解温度は、合金組成に応じて決めればよく、通常は、前記粗合金の融点より50℃以上高い温度で加熱することが好ましい。

【0065】前記噴霧するガスとしては不活性ガスが好ましく、例えば、ヘリウムガス、アルゴンガス等である。好ましくはアルゴンガスである。噴霧するガスの圧力は、5~200kgf/cm²、好ましくは10~100kgf/cm²である。200kgf/cm²を越える場合には、冷却速度が速くなりすぎて液滴が回転冷却体に到達するまでに冷却凝固が生じる場合がある。

【0066】前記回転冷却体の形状は、円錐型又は円盤型である。好ましくは偏平木の葉状の粒子が得やすい円錐型である。また、前記回転冷却体の回転数は、1000~20000rpm、好ましくは3000~12000rpmである。回転数が1000rpm未満の場合には、得られる急冷凝固物粒子どうしが重なりやすくなり、塊状粒子となる場合があり、急冷による冷却凝固が十分に行われず軟磁性非晶質相の生成が不十分となる。また、ボンド磁石の磁石粉末の密度が十分に得られなくなる。なお、円盤型の回転冷却体に合金溶湯の液滴を衝突させる場合には、その衝突箇所は、円盤型の回転冷却体の回転軸から円周方向にややずらした部分とすることが望ましい。

【0067】また、必要により、前記粗合金の加熱溶解、冷却固化と再度の加熱溶解及び回転冷却体による冷却凝固を同一装置内で連続して行ってもよい。

【0068】なお、事前に冷却固化させることなく同一装置内で、前記金属状元素原料及び/又は前記合金状原料の各原料の加熱溶解から、直接、回転冷却体による冷却凝固を行ってもよい。

【0069】なお、回転冷却体による冷却凝固においては、初期に形成される液滴が比較的大きくなりやすいため、初期に得られる急冷凝固物粒子粉末を採取しないか又は事後に分級等により粗大粒子を除いておくことが望ましい。また、残存する合金溶湯が少なくなってきた場合には形成される液滴が微小化し、得られる急冷凝固物粒子粉末も微粒子化するので終了直前に得られる急冷凝固物粒子粉末は採取しないか又は分級等により微粒子成分を除去しておくことが望ましい。

【0070】前記回転冷却体による冷却凝固によって得られた急冷凝固物粒子粉末を構成する粒子は、主として非晶質合金組織を含むものである。

【0071】この非晶質合金組織は、X線回折によりブロードなピークを示し、透過型電子顕微鏡(TEM)による電子線回折のハローパターンにより確認できる。なお、合金組成によっては、非晶質の合金組織が100%得られないで部分的に結晶相を含む場合もあり得るが、

12

本発明の目的が達成できるために十分な量であればよい。

【0072】この非晶質合金組織は軟磁性を有しており、その磁氣的役割と共に、結晶化のための熱処理過程において、結晶粒の粗大成長を抑制し微細な結晶相の形成を可能とするため合金全体の硬磁性を向上させる重要な役割を担っている。

【0073】前記加熱処理は、600~850℃の温度範囲で行う。600℃未満の場合は、Nd₂Fe₁₄B₁型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相が十分析出せず、3.5kOe以上の保磁力が得られない。850℃を越える場合は、αFe、固溶体(αFeとMとからなる固溶体)又はαFeと固溶体との混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性結晶相の粗大成長が顕著になり保磁力が発現しにくくなり、また、残存する軟磁性非晶質相の比率が著しく低下し、防錆性が発揮されにくくなる。なお、急冷凝固物粒子粉末の合金組成に応じて、良好な磁気特性を発現するための最適な加熱温度を適宜選択すればよい。

【0074】前記加熱処理における雰囲気は、得られる磁石合金粒子粉末の磁気特性を損なわない範囲であれば特に問題はないが、アルゴンガスなどの不活性雰囲気もしくは10⁻¹Torr以下の真空中が望ましい。

【0075】前記加熱処理における加熱時間は、少なくとも10秒以上が望ましい。10秒未満では十分な軟磁性結晶相と硬磁性結晶相の析出がなされない傾向があり、また、長くとも1時間以内が望ましく、1時間をこえると軟磁性結晶相が粗大成長するため、いずれも3.5kOe以上の保磁力は得られない傾向がある。

【0076】前記加熱処理により、非晶質相から結晶相が生成される。この時、非晶質相を完全に結晶相にすることなく、全合金組織に対し10面積%以下の非晶質相を残置させるように加熱することが必要である。

【0077】非晶質相を残すための条件としては、結晶相の析出と成長が全面的に至らないように、前記加熱処理の条件を設定する必要がある。また、添加元素Mの効果により、非晶質相の安定化および析出相の成長抑制を図ることもできるので、適切な合金組成の設定も重要である。加熱処理法の例としては、フラッシュアニーリング法や急速加熱-急速冷却法が挙げられ、合金組成によっては、通常の熱処理法でも十分である。

【0078】残留する非晶質相の存在割合は好ましくは1~10面積%、より好ましくは9面積%以下である。1面積%未満では前記の目的とする効果が得られず、防錆性能の向上も期待できず、10面積%を越える場合には、非晶質相と結晶相の間あるいは結晶相同士の間で働く交換相互作用に起因する磁氣的結合が弱められるからである。

【0079】次に、本発明に係るボンド磁石について述べる。

(8)

13

【0080】本発明に係るボンド磁石は、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を結合剤樹脂中に分散してなるものであって、該偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末が85～99重量%と残部が結合剤樹脂とその他添加剤とからなる。本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の好ましい割合は、成形法により若干異なるが、射出成形ボンド磁石の場合には、88～93重量%が好ましく、押出成形ボンド磁石の場合には、85～92重量%が好ましく、圧縮成形ボンド磁石の場合には、95～98.5重量%が好ましく、96～98.5重量%がより好ましく、カレンダー成形ボンド磁石の場合には、85～90重量%が好ましい。

【0081】本発明に係るボンド磁石は、残留磁束密度 B_r が7.0kG以上、好ましくは7.2kG以上であり、保磁力 iH_c が3.5kOe以上、好ましくは3.7kOe以上を有し、最大エネルギー積 $(BH)_{max}$ が9.5MGoe以上、好ましくは9.7MGoe以上、密度が6.1g/cm³以上を有する。

【0082】なお、本発明に係るボンド磁石の耐食性は、80℃、90%相対湿度の環境下で、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間が少なくとも120時間以上が望ましく、130時間以上がより望ましい。

【0083】次に、本発明に係るボンド磁石の製造法について述べる。

【0084】本発明に係るボンド磁石は、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を結合剤樹脂と混合、混練し、該混練物を射出成形、押出成形、圧縮成形又はカレンダー成形等の周知の成形法で成形加工することにより得ることができる。

【0085】前記結合剤樹脂としては、成形法によって種々選択することができ、射出成形、押し出し成形及びカレンダー成形の場合には熱可塑性樹脂が使用でき、圧縮成形の場合には、熱硬化性樹脂が使用できる。前記熱可塑性樹脂としては、ナイロン(PA)系、ポリプロピレン(PP)系、エチレンビニルアセテート(EVA)系、ポリフェニレンサルファイド(PPS)系、液晶樹脂(LCP)系、エラストマー系、ゴム系等の樹脂が使用でき、前記熱硬化性樹脂としては、エポキシ系、フェノール系等の樹脂を使用することができる。

【0086】前記本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の混合割合は、85～99重量%であり、最適な混合割合は、成形法により若干異なるが、射出成形においては、88～93重量%が好ましく、押出成形では85～92重量%が好ましく、圧縮成形では96～98.5重量%が好ましく、カレンダー成形では85～90重量%が好ましい。85重量%未満の場合には、磁石合金粒子粉末の割合が

14

少なすぎて十分な磁気特性を有するボンド磁石が得られない。前記各成形法における磁石合金粒子粉末の混合割合の上限は、それぞれの成形が可能な結合剤樹脂との混練物もしくは混合物の流動性や成形物の機械的強度の要求に基づいて決定することができる。

【0087】なお、ボンド磁石を製造するに際して、成形を容易にしたり、磁気特性を十分に引き出すために、必要により、結合剤樹脂の他に可塑剤、滑剤、カップリング剤など周知の添加物を使用してもよい。

10 【0088】これらの添加物は、目的に応じて適切なものを選択すればよく、可塑剤としては、それぞれの使用樹脂に応じた市販品を使用することができ、その合計量は使用する結合剤樹脂に対して0.01～5.0重量%程度が使用できる。

【0089】前記滑剤としては、ステアリン酸とその誘導体、無機滑剤、オイル系等が使用でき、ボンド磁石全体に対して0.01～1.0重量%程度が使用できる。

20 【0090】前記カップリング剤としては、使用樹脂とフィラーに応じた市販品が使用でき、使用する結合剤樹脂に対して0.01～3.0重量%程度が使用できる。

【0091】前記混合は、ヘンシェルミキサー、V字ミキサー、ナウター等の混合機などで行うことができ、混練は一軸混練機、二軸混練機、臼型混練機、押し出し混練機などで行うことができる。

【0092】前記成形法により成形加工して得られた成形物は、常法に従って電磁石着磁やパルス着磁することにより、本発明に係るボンド磁石とすることができる。

【0093】

30 【発明の実施の形態】本発明の代表的な実施の形態は次の通りである。

【0094】希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の粒子形状は、電子顕微鏡による外観観察を行って判断した。また、粒子粉末の平均長軸径、平均短軸径、平均厚さの算出は100倍に拡大した電子顕微鏡写真に示されている粒子30個について測定を行った結果により示した。

40 【0095】希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の合金組織の相構造は、高分解能透過型電子顕微鏡HR-TEM(日本電子株式会社製)、ナノビーム電子線回折装置(日本電子株式会社製)、エネルギー分散型X線分析装置EDX(日本電子株式会社製)及びX線回折装置(理学電機工業株式会社)(ターゲット:鉄)を用いて観察及び測定した。

【0096】前記合金組織の磁気構造は、上記ナノビーム電子線回折装置を用いた電子線回折によって結晶相の同定により磁気構造の確認とした。即ち、 α -Fe型結晶やFe₃B型結晶を同定することにより軟磁性であることを確認した。同様に、Nd₂Fe₁₄B₁型正方晶系結晶相を同定することにより硬磁性であることを確認した。

50

15

【0097】前合金組織の面積%とは、透過型電子顕微鏡（TEM）などによる観察において、2次元視野内における面積割合を言う。

【0098】希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の化学組成は、化学分析により測定した値で示した。

【0099】希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の磁気特性は、試料振動型磁力計VSM（理研電子株式会社製）で測定した値で示した。

【0100】また、ボンド磁石の磁気特性は、予め、約50kOeのパルス着磁を施した後、B-Hカーブトレ

ーサー（東英工業株式会社製）で測定した値で示した。
【0101】希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末のキュリー点は、熱電対が付いた石英による試料支持棒と被測定試料を真空雰囲気にてできるケース及び加熱ヒーターを試料振動型磁力計VSM（東英工業株式会社製）にセットした装置を用いて磁化の温度変化を測定することにより行った。即ち、被測定試料を10kOe以上の磁場で着磁した後、1kOeの磁場をかけながら温度を上昇させ、温度上昇に伴う磁化の値を記録し、明らかにハード相の磁化曲線がソフト相の磁化曲線に交差した点の温度をキュリー温度とした。

【0102】磁石合金粒子粉末の防錆性は、JIS Z 2371に基づいた塩水噴霧試験方法で行った。即ち、一定時間毎に取り出して、走査型電子顕微鏡（SEM）により発錆の有無、発錆点の増加・拡大の様子を観察し、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間で示した。

【0103】ボンド磁石の耐食性は、80℃、90%相対湿度の環境下で、何時間で発錆するか、あるいは観察面において発錆点がどのように増加・拡大するかにより評価した。定量的には50倍の光学顕微鏡視野で、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間で示した。

【0104】ボンド磁石の密度は、硬化後の円柱状圧縮成形ボンド磁石を室温約25℃に十分冷却した後、その円柱の高さと断面直径をそれぞれ3箇所以上マイクロメーターにて測定しその平均値から円柱の体積を求めた。次に当該圧縮成形ボンド磁石の重量を電子天秤にて測定し、重量値（g）を体積値で除した値で示した。

【0105】以下、図1を用いて、希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の製造について説明する。まず、原子比でNd₇F_e_{83.5}C_{0.4}Nb₁Ga_{0.5}B₄の組成となるように、金属ネオジウム片（純度99.9%）（株式会社日本イットリウム製）169.2g、金属鉄片（電解鉄、純度99.9%）（株式会社昭和電工製）766.6g、金属コバルト片（純度99.9%、住友金属鉱山株式会社製）38.76g、金属ニオブウム片15.24g、金属ガリウム片5.73g及びクリスタルボロン片7.13gをそれぞれ秤量して、総重量を約1kgとした。これらをアルゴンガス減圧雰囲気中で高周

(9)

16

波溶解で鋳造して1kgの粗合金を得た。

【0106】次に、得られた粗合金1kgをアルミナ製ルツボ1に入れ、高周波加熱により1350℃で熔融させ、合金溶湯2とした。この合金溶湯2をアルミナ製ノズル3から流出滴下させ、滴下する合金溶湯2に対して噴霧化ノズル5よりアルゴンガス4を20kg/cm²の圧力で吹きつけ、合金溶湯の液滴6を形成させた。この合金溶湯の液滴6を該液滴の流動方向に配置されているロール径200mmφ、円錐角120度、回転数7200rpmの銅製の円錐形回転冷却体7に衝突させ、急冷凝固物粒子粉末8を得た。

【0107】得られた急冷凝固物粒子粉末は平均長軸径250μm、平均短軸径150μm、平均厚さ15μm、短軸径と長軸径の比の平均値1.7、平均アスペクト比1.7の形状特性を有するものであった。この粉末を走査型電子顕微鏡による観察をしたところ、図2の走査型電子顕微鏡写真（×85）に示す通り、偏平木の葉状の粒子からなる急冷凝固物粒子粉末であることが確認できた。

【0108】得られた急冷凝固物粒子粉末は、X線回折の結果、全体的にブロードなピークを示していた。このX線回折結果と高分解能透過型電子顕微鏡観察結果とを併せて検討した結果、少なくとも大部分が非晶質相からなっていることが確認できた。また、この合金粒子粉末の構成元素比を化学分析により測定した結果、Nd₇F_e_{83.5}C_{0.4}Nb₁Ga_{0.5}B₄であり、ほぼ仕込み組成比に等しいことが確認された。

【0109】上記急冷凝固物粒子粉末を5×10⁻²Torrの真空中で石英管に封入し、750℃の温度で3分間加熱処理を行った。この加熱処理後の希土類-鉄-ボロン系合金粒子粉末は、X線回折測定の結果得られた図3に示すX線回折パターンの解析の結果、αFe型（Aで表したピーク）及びNd₂F_e₁₄B₁型（Bで表したピーク）の2種類の結晶構造に基づく明瞭なピークが検出された。また、図4に示す電子線回折パターンから、結晶性を示すスポットとともに非晶質相の存在を示すハローがあり非晶質相も幾分か残存していることが推認された。

【0110】上記加熱処理後の希土類-鉄-ボロン系合金粒子粉末について、高分解能透過型電子顕微鏡とナノビーム電子線回折装置及びエネルギー分散型X線分析装置を用いて、その微細構造を観察した。その結果、合金組織は、αFeを含む軟磁性結晶相が全結晶相に対し72面積%程度であって、Nd₂F_e₁₄B₁を含む硬磁性結晶相が全結晶相に対し28面積%程度であり、これら結晶相の総和は、二次元的視野全体を100面積%とすると全合金組織に対し91面積%であった。従って、残りの9面積%は、軟磁性非晶質相であった。

【0111】また、αFeや固溶体を含む軟磁性結晶相の結晶粒径は、20～45nmの範囲であって、Nd₂

(10)

17

Fe₁₄B₁型を含む硬磁性結晶相の結晶粒径は、15～40nmの範囲であり、加熱処理前の結晶相と非晶質相の混合相から熱処理により各相の析出が促進され、結晶成長も起こっていることが観察された。さらに、残存非晶質相には、NdとBの各元素が濃縮され、それぞれ1.1.3原子%、7.8原子%であることが分析結果から確認できた。

【0112】上記熱処理後の希土類-鉄-ボロン系合金粒子粉末の室温磁気特性を試料振動型磁力計で測定した結果、保磁力*iH_c*が4.7kOe、残留磁束密度*B_r*が11.2kG、最大磁気エネルギー積(BH)_{max}が17.4MGOeであった。

【0113】また、上記得られた希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の防錆性能を調べるため、塩水噴霧試験を行い、12時間毎に取り出して偏平木の葉状の粒子表面に占める赤錆の面積比率を走査型電子顕微鏡で観察した。その結果、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間は72時間後であり、上記希土類磁石合金粒子粉末が防錆性にも優れていることを確認できた。

【0114】上記希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末98gとエポキシ樹脂XW-2214(商品名、日本ペルノックス株式会社製)2gとを適量のメチルエチルケトンで溶かして希土類合金粒子粉末をよく混合した後、メチルエチルケトンを乾燥気化させ圧縮成形用の混合物(希土類合金粒子粉末98重量%、エポキシ樹脂2重量%に相当する。)とした。

【0115】上記混合物3.3gを直径10mmの円柱状試料用プレス治具に入れ、約7ton/cm²の圧力でプレスして直径10mm、長さ約7mmの円柱状圧粉体を得た。

【0116】上記圧粉体を150℃で1時間加熱処理してエポキシ樹脂を硬化させ、密度6.3g/cm³の圧縮成形ボンド磁石を得た。

【0117】上記得られた圧縮成形ボンド磁石にパルス着磁機で約50kOeの着磁を施した後、B-Hトレーサーで室温の磁石特性を測定した結果、残留磁束密度*B_r*が9.1kG、保磁力*iH_c*が4.6kOe、最大磁気エネルギー積(BH)_{max}が10.5MGOeであった。

【0118】

【作用】本発明において、最も重要な点は、流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固する前に、当該液滴の流動方向に配置された円錐型又は円盤型の回転冷却体を用いて冷却凝固させることにより偏平木の葉状の粒子からなる希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を粉砕の工程を必要とせず、極めて高効率に得ることができるという事実である。

【0119】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末は、粒子形状が曲

18

面でない偏平木の葉状であることから粉末の敷き詰め効果であるリーフィング効果に優れ、ボンド磁石製造時において高充填にすることができ、その結果、大きな飽和磁束密度を得ることができる。

【0120】また、防錆性に優れた希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末が得られる理由について、本発明者は、非晶質相が主として磁気的な役割を担う軟磁性結晶相や硬磁性結晶相の周囲を取り囲んで存在し、しかも、適度の量が安定して存在していることによるものと考えている。

【0121】なお、ボンド磁石用希土類磁石合金粒子粉末を作製する方法として、従来の単ロール方式で行われる場合には、厚さが不揃いで曲面をもった薄帯ができ、ボンド磁石製造時にはこれを粉砕して用いる必要がある。また、アトマイズ方式で行われる場合には、球状の粒子粉末が得られ、高密度に充填するには不適であり、これを粉砕した場合も不定形の粒子となり、高密度に充填するには適さないものである。

【0122】ところで、塗料用の顔料又はプラスチック用のフィラーとして硝子粉末、ステンレス粉末等の薄片状粉末を得る製造法(特開平2-34706号公報、特開平2-93007号公報)が知られている。かかる製造法においては、溶融物の液滴を傘型、ホーン型又は円盤状の回転冷却体によって冷却凝固させることにより薄片状粉末を得るものであって、塗膜面に平行に配列するリーフィング現象が良好に起こり塗膜面を隙間なく覆って良好な耐食性、耐候性を付与するものである。

【0123】

【実施例】次に、実施例並びに比較例を挙げる。

実施例1～27、比較例1～3；

【0124】<希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の製造>

実施例1～27

製造合金組成及び合金粒子粉末の製造工程における回転冷却体の回転数と噴霧アルゴンガス圧力及びその後の熱処理温度を種々変化させた以外は、前記発明の実施の形態と同様に、希土類磁石合金粒子粉末を得た。

【0125】実施例1～27で得られた希土類磁石合金粒子粉末は、前記発明の実施の形態と同様に合金組織の相構造を観察した。

【0126】その結果、αFeを含む軟磁性結晶相が全結晶相に対し18～75面積%の範囲であって、Nd₂Fe₁₄B₁を含む硬磁性結晶相が全結晶相に対し25～82面積%の範囲であり、これら結晶相の総和は、二次元的視野全体を100面積%とすると全合金組織に対し90～99面積%の範囲であった。従って、軟磁性非晶質相は、1～10面積%の範囲であった。

【0127】また、αFe、固溶体(αFeとMとからなる固溶体)又はαFeと固溶体の混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性結晶相の結晶粒径は、5～100

(11)

19

nmの範囲であって、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}_1$ 型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相の結晶粒径は、5～100nmの範囲であり、加熱処理前の非晶質相から熱処理により各相が析出し、結晶化していることが観察された。さらに、残存非晶質相には、希土類とBの各元素が濃縮され、それぞれ10～15原子%の範囲、7～9原子%の範囲であることが分析結果から確認できた。

【0128】この時の主要製造条件を表1及び表2に、得られた希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の諸特性を表3及び表4に示す。

【0129】比較例1（単ロール式液体急冷法：日本規格協会発行「アモルファス金属のおはなし」（1988年）第36～37頁）

実施例20の合金組成とした以外は、前記発明の実施の形態と同様にして合金溶湯を得、該合金溶湯をノズルからガス圧により流出させ、当該合金溶湯の流出方向に配置され縦方向に回転するロール型の回転冷却体の円周表面に該溶湯を薄く引き伸ばして薄帯状に冷却凝固させた。得られた冷却凝固物は厚み30～50 μm の薄帯であった。当該薄帯を機械粉碎とふるいを用いて500 μm 以下の粉末とした。この粉末は、電子顕微鏡観察の結果、粒子形状がガレキ状であった。得られたガレキ状粉末の製造条件及び諸特性を表2及び4に示す。

* 【0130】比較例2

実施例20の合金組成とし、且つ、急冷凝固物粒子粉末の生成にあたって流出合金溶湯にガスを噴霧しなかった以外は、前記発明の実施の形態と同様にして冷却凝固物を得た。この冷却凝固物は、100 μm 程度乃至1mm程度の不均一な厚みを有しており、波打つようにそれ曲がった板状形態を呈していた。当該凝固物を機械粉碎とふるいを用いて500 μm 以下の粉末とした。得られた粉末の製造条件及び諸特性を表2及び4に示す。

10 【0131】比較例3（ガスアトマイズ法：丸善発行「金属便覧」（1990年発行第932～933頁）

実施例20の合金組成とした以外は、前記発明の実施の形態と同様にして合金溶湯を得、該合金溶湯をノズルから流出させ、当該流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固するまで衝突することのない程十分大きいチャンバー内を飛行させた。上記液滴は飛行中に急冷凝固して落下した。得られた物体は直径数 μm 乃至数百 μm の範囲の広い粒度分布を有する球状の粉末であった。得られた粉末の製造条件及び諸特性を表2及び4に示す。

20 【0132】

【表1】

*

実施例及び比較例	希土類磁石合金粒子粉末の製造条件			
	製造合金組成	回転冷却体		加熱処理温度(°C)
		回転冷却体の形状	回転数(rpm)	
実施例1	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72}\text{Co}_8\text{Ti}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例2	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72}\text{Co}_8\text{V}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例3	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72}\text{Co}_{8.5}\text{Cr}_{0.5}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例4	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72.5}\text{Co}_7\text{Mn}_{0.5}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例5	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{71.5}\text{Co}_7\text{Cu}_{0.5}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例6	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72.5}\text{Co}_6\text{Ca}_{0.5}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例7	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72}\text{Co}_{6.5}\text{Zr}_{0.5}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例8	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72.5}\text{Co}_{4.5}\text{Nb}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例9	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72.5}\text{Co}_{5.5}\text{Mo}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例10	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72}\text{Co}_{6.7}\text{Hf}_{0.3}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例11	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72}\text{Co}_8\text{Ta}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例12	$\text{Nd}_6\text{Pr}_1\text{Fe}_{72}\text{Co}_4\text{W}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例13	$\text{Nd}_6\text{Pr}_1\text{Fe}_{72}\text{Co}_{6.5}\text{Si}_{1.5}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例14	$\text{Nd}_6\text{Fe}_{72}\text{Co}_4\text{Nb}_1\text{V}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例15	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72.5}\text{Co}_4\text{Nb}_1\text{Cu}_{0.5}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例16	$\text{Nd}_6\text{Fe}_{72}\text{Co}_4\text{Cr}_2\text{Mn}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例17	$\text{Nd}_6\text{Pr}_1\text{Fe}_{72.5}\text{Co}_1\text{Ti}_1\text{Ga}_{0.5}\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例18	$\text{Nd}_6\text{Pr}_1\text{Fe}_{72}\text{Co}_4\text{Ta}_1\text{Si}_1\text{B}_4$	円錐型	7200	20
実施例19	$\text{Nd}_6\text{Pr}_1\text{Fe}_{72}\text{Co}_4\text{Nb}_{1.5}\text{B}_{2.5}$	円錐型	7200	20
実施例20	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{72.5}\text{Co}_4\text{Nb}_1\text{Cu}_{0.5}\text{B}_4$	円錐型	12000	20

【0133】

【表2】

* * 【表3】※ ※ 【表4】【表 5】

(13)

23

実施例及び 比較例	使用合金粒子粉 末の組成	ボンド磁石の特性				耐食性 試験(200℃ 5%食塩水)の 経過時間 (時間)
		保磁力 iH_c (kOe)	残留磁束密 度 B_r (kGauss)	最大エネルギー積 (BH) _{max} (MGoe)	密度 (g/cm ³)	
実施例21	実施例1	3.8	6.1	9.7	6.2	145
実施例22	実施例2	4.7	6.2	10.6	6.2	157
実施例23	実施例3	4.8	7.8	10.1	6.2	180
実施例24	実施例4	4.0	6.8	10.6	6.1	193
実施例25	実施例5	3.9	7.8	10.8	6.2	173
実施例26	実施例6	4.1	8.1	9.8	6.2	144
実施例27	実施例7	4.4	7.8	9.8	6.1	149
実施例28	実施例8	4.6	8.2	11.2	6.1	156
実施例29	実施例9	3.9	7.8	10.7	6.2	149
実施例30	実施例10	4.2	7.4	9.7	6.2	180
実施例31	実施例11	4.3	7.2	9.2	6.2	146
実施例32	実施例12	4.3	7.8	10.7	6.1	146
実施例33	実施例13	4.6	8.2	11.0	6.2	146
実施例34	実施例14	4.9	8.0	11.4	6.1	169
実施例35	実施例15	4.4	8.6	11.0	6.1	153
実施例36	実施例16	4.7	8.0	10.7	6.2	173
実施例37	実施例17	4.5	8.1	10.1	6.2	132
実施例38	実施例18	4.8	8.0	11.0	6.2	136
実施例39	実施例19	5.2	7.8	11.8	6.2	139
実施例40	実施例20	3.7	7.7	9.6	6.1	212
実施例41	実施例21	4.6	8.1	10.8	6.2	138
実施例42	実施例22	4.8	7.9	9.6	6.2	128
実施例43	実施例23	5.7	7.4	11.2	6.2	135
実施例44	実施例24	6.0	7.4	11.3	6.2	147
実施例45	実施例25	6.1	7.2	10.4	6.2	110
実施例46	実施例26	6.1	7.8	12.5	6.2	120
実施例47	実施例27	6.1	7.7	11.8	6.2	138
比較例1	比較例1	4.8	7.1	9.2	6.0	90
比較例2	比較例2	3.1	6.8	8.6	6.1	78
比較例3	比較例3	5.2	5.2	7.8	5.8	80

【0139】本発明の実施例で得られたボンド磁石は、保磁力 iH_c が3.7～6.4kOe、残留磁束密度 B_r が7.2～9.3kGauss、最大エネルギー積 $(BH)_{max}$ が9.5～12.5MGoe、密度が6.2～6.5g/cm³、耐食性が132～212時間であった。

【0140】

【発明の効果】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末は、大きな残留磁束密度 B_r と高い保磁力 iH_c を有し、その結果、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ が大きく、防錆性に優

24

れ、且つ、リーフィング効果に優れているから、高性能ボンド磁石用材料として好適なものである。

【0141】そして、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末は、希土類の量が10原子%未満と少ないものであるから、経済的、工業的に有利に得ることができる。

【0142】更に、本発明に係る偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を用いて得られるボンド磁石は、用いる偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末が上記諸特性を有することに起因して、大きな残留磁束密度 B_r と高い保磁力 iH_c を有し、その結果、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ が大きく、且つ、耐食性に優れており、密度が大きいものであるから、小型化が可能であると共に各種用途に使用可能なものである。従って、本発明の産業利用性は非常に大きいといえる。

【図面の簡単な説明】

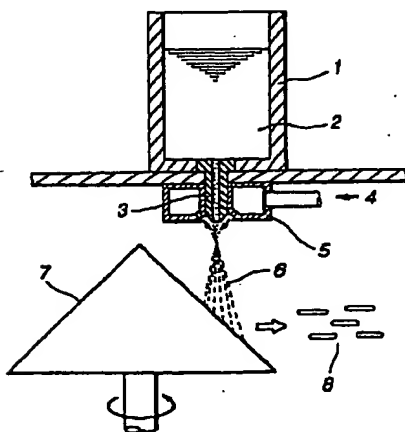
【図1】 発明の実施の形態における偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を製造する装置の概略図である。

【図2】 発明の実施の形態で得られた偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の粒子形状を示した走査型電子顕微鏡写真(×85)である。

【図3】 発明の実施の形態で得られた偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の結晶構造を示したX線回折パターンである。

【図4】 発明の実施の形態で得られた偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の結晶構造を示した電子線回折パターンである。

【図1】

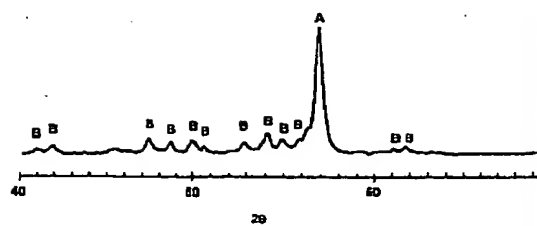


【図2】

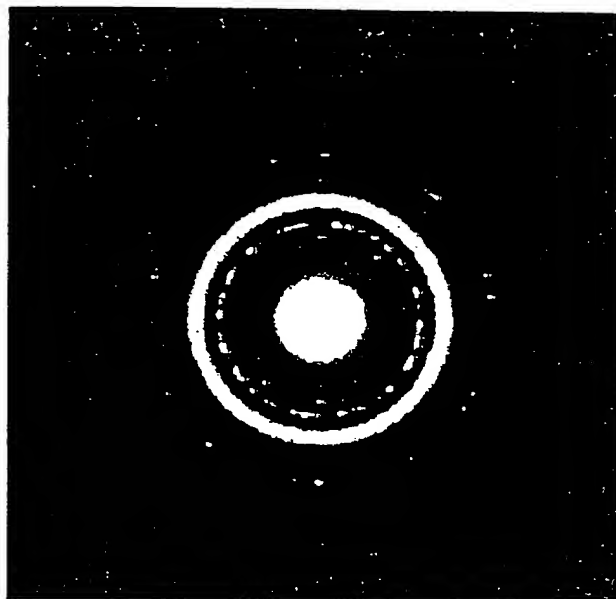


(14)

【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51)Int. Cl. 6

識別記号

H 0 1 F 1/08

F I

H 0 1 F 1/08

A